

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicants : Hiromichi NAKATA, et al.
Serial No. : Not Yet Assigned
Filed : HEREWITH
For : FUEL CELL GAS SEPARATOR, MANUFACTURING METHOD
THEREOF, AND FUEL CELL

Group Art Unit : Not Yet Assigned
Examiner : Not Yet Assigned

Assistant Commissioner of Patents
Washington, D.C. 20231



5#

CLAIM TO CONVENTION PRIORITY UNDER 35 U.S.C. § 119

SIR:

The Convention Priority Date of Japanese Patent Application Nos. 2000-068553 filed on March 13, 2000 and 2000-169897 filed on June 7, 2000 was claimed in the Declaration/ Power of Attorney filed under separate cover. To complete the claim to the Convention Priority Date of said Japanese Patent Application, a certified copy thereof is submitted herewith.

Respectfully submitted,

Dated: March 12, 2001

A handwritten signature in black ink, appearing to read "Mark H. Neblett".

Mark H. Neblett
Registration No. 42,028

KENYON & KENYON
1500 K Street, N.W., Suite 700
Washington, DC 20005
Tel: (202) 220-4200
Fax: (202) 220-4201

日 本 国 特 許 庁

PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT



別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日
Date of Application:

2000年 3月13日

出 願 番 号
Application Number:

特願2000-068553

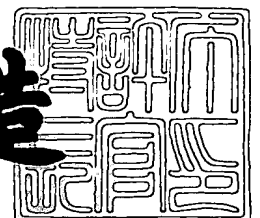
出 願 人
Applicant(s):

トヨタ自動車株式会社

2000年11月10日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2000-3092759

【書類名】 特許願

【整理番号】 PA14D259

【提出日】 平成12年 3月13日

【あて先】 特許庁長官 近藤 隆彦 殿

【国際特許分類】 H01M 8/02

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

【氏名】 中田 博道

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

【氏名】 横井 正良

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

【氏名】 大西 昌澄

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

【氏名】 相原 秀雄

【特許出願人】

【識別番号】 000003207

【氏名又は名称】 トヨタ自動車株式会社

【代理人】

【識別番号】 100096817

【弁理士】

【氏名又は名称】 五十嵐 孝雄

【電話番号】 052-218-5061

【選任した代理人】

【識別番号】 100097146

【弁理士】

【氏名又は名称】 下出 隆史

【選任した代理人】

【識別番号】 100102750

【弁理士】

【氏名又は名称】 市川 浩

【選任した代理人】

【識別番号】 100109759

【弁理士】

【氏名又は名称】 加藤 光宏

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 007847

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9708410

【包括委任状番号】 9904031

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 燃料電池用ガスセパレータおよび該燃料電池用セパレータの製造方法並びに燃料電池

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 燃料電池内に組み込まれたときにその表面でガス流路を形成する燃料電池用ガスセパレータであって、

金属製のセパレータ基材と、

前記ガスセパレータを燃料電池内に組み込んだときに、隣接する部材と接触する接触面に対応する前記セパレータ基材表面のうち、前記隣接する部材との間の接触抵抗に関わる表面上に少なくとも形成され、貴金属によって構成される第 1 のコート層と、

炭素材料によって前記第 1 のコート層上に形成される第 2 のコート層とを備える燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項 2】 前記第 1 のコート層の厚さは、 $0.01\mu\text{m}$ から $10\mu\text{m}$ の範囲にあることを特徴とする

請求項 1 記載の燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項 3】 前記第 1 のコート層を構成する前記貴金属は、銀であることを特徴とする

請求項 1 または 2 記載の燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項 4】 請求項 1 ないし 3 いずれか記載の燃料電池用ガスセパレータであって、

前記セパレータ基材は卑金属によって構成され、

前記第 2 のコート層は、前記セパレータ基材上において、前記第 1 のコート層が形成される領域に加えて、前記燃料電池用内で前記ガス流路を形成する領域上にも形成され、

前記セパレータ基材を構成する前記卑金属は、前記第 2 のコート層が形成された条件下で、不動態を形成し得ることを特徴とする

燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項 5】 前記第 1 のコート層は、前記セパレータ基材上において、前

記接触抵抗に関わる表面上に加えて、前記ガス流路を形成する領域上にさらに形成されることを特徴とする

請求項 1 ないし 4 いずれか記載の燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項 6】 請求項 1 ないし 5 いずれか記載の燃料電池用ガスセパレータであって、

少なくとも、前記セパレータ基材における前記接触抵抗に関わる表面上において、前記第 1 のコート層と前記セパレータ基材との間に、卑金属からなる第 3 のコート層をさらに備えることを特徴とする

燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項 7】 前記第 3 のコート層を構成する卑金属は、前記セパレータ基材を構成する金属よりも貴であることを特徴とする

請求項 6 記載の燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項 8】 請求項 6 または 7 記載の燃料電池用ガスセパレータであって

前記第 2 のコート層および前記第 3 のコート層は、前記セパレータ基材上において、前記接触抵抗に関わる表面上に加えて、前記燃料電池内で前記ガス流路を形成する領域上にさらに形成され、

前記第 3 のコート層は、前記第 2 のコート層が形成された条件下で不動態を形成し得る卑金属によって形成されることを特徴とする

燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項 9】 前記第 3 のコート層の厚さは、 $0.01\mu\text{m}$ から $10\mu\text{m}$ の範囲にあることを特徴とする

請求項 6 ないし 8 いずれか記載の燃料電池用ガスセパレータ

【請求項 10】 前記第 2 のコート層は、前記炭素材料の他に、耐酸性を有する樹脂あるいはゴムをバインダとして含むことを特徴とする

請求項 1 ないし 9 いずれか記載の燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項 11】 燃料電池内に組み込まれたときにその表面でガス流路を形成する燃料電池用ガスセパレータであって

金属製のセパレータ基材と、

前記ガスセパレータを燃料電池内に組み込んだときに、隣接する部材と接触する接触面に対応する前記セパレータ基材表面のうち、前記隣接する部材との間の接触抵抗に関わる表面上に少なくとも形成され、卑金属によって構成される第 1 のコート層と、

炭素材料によって前記第 1 のコート層上に形成される第 2 のコート層とを備え

前記第 1 のコート層は、該第 1 のコート層上に前記第 2 のコート層が形成された条件下で十分に安定であって電子伝導性を有する複数の粒子を、少なくとも前記第 2 のコート層と接する側の表面上に備えることを特徴とする

燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項 1 2】 前記電子伝導性を有する粒子は、炭素を備える粒子であることを特徴とする

請求項 1 1 記載の燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項 1 3】 第 1 のコート層を形成する前記卑金属は、前記第 1 のコート層上に前記第 2 のコート層が形成された条件下において、その表面が酸化されて不動態層を形成し得る金属である

請求項 1 1 または 1 2 記載の燃料電池用ガスセパレータ。

【請求項 1 4】 積層された複数の単セルを備え、水素を含有する燃料ガスと酸素を含有する酸化ガスの供給を受け、電気化学反応によって起電力を得る燃料電池であって、

隣接する前記単セル間に設けられ、一方の単セルに供給される前記燃料ガスと、他方の単セルに供給される前記酸化ガスとが混合するのを防ぐガスセパレータを備え、

該セパレータは、請求項 1 ないし 1 3 いずれか記載の燃料電池用ガスセパレータである

燃料電池。

【請求項 1 5】 燃料電池内に組み込まれたときにその表面でガス流路を形成する燃料電池用ガスセパレータの製造方法であって、

(a) 所定の形状を有する金属製のセパレータ基材を成形する工程と、

(b) 前記 (a) 工程で得た前記セパレータ基材において、前記ガスセパレータを燃料電池内に組み込んだときに隣接する部材と接触する接触面に対応する前記セパレータ基材表面のうち、少なくとも、前記隣接する部材との間の接触抵抗に関わる表面上に、貴金属からなる第 1 のコート層を形成する工程と、

(c) 前記 (b) 工程で形成した前記第 1 のコート層上に、炭素材料によって第 2 のコート層を形成する工程と

を備えることを特徴とする燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【請求項 16】 請求項 15 記載の燃料電池用ガスセパレータの製造方法であって、

前記 (b) 工程は、

(b-1) 前記第 1 のコート層を形成するのに先立って、前記セパレータ基材上の、少なくとも前記接触抵抗に関わる表面上に、卑金属からなる第 3 のコート層を形成する工程と、

(b-2) 前記第 3 のコート層上に、前記第 1 のコート層を形成する工程とを備える燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【請求項 17】 前記第 1 のコート層を構成する前記貴金属は、銀であることを特徴とする

請求項 15 または 16 記載の燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【請求項 18】 燃料電池内に組み込まれたときにその表面でガス流路を形成する燃料電池用ガスセパレータの製造方法であって、

(a) 所定の形状を有する金属製のセパレータ基材を成形する工程と、

(b) 前記 (a) 工程で得た前記セパレータ基材表面において、前記ガスセパレータを燃料電池内に組み込んだときに隣接する部材と接触する接触面に対応する前記セパレータ基材表面のうち、少なくとも、前記隣接する部材との間の接触抵抗に関わる表面上に、卑金属からなる第 1 のコート層を形成する工程と、

(c) 前記 (b) 工程で形成した前記第 1 のコート層上に、炭素材料によって第 2 のコート層を形成する工程と

を備え、

前記 (b) 工程で形成する前記第 1 のコート層は、該第 1 のコート層上に前記

第 2 のコート層が形成された条件下で十分に安定であって電子伝導性を有する複数の粒子を、少なくとも前記第 2 のコート層と接する側の表面上に備えることを特徴とする燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【請求項 1 9】 前記電子伝導性を有する粒子は、炭素を備える粒子であることを特徴とする

請求項 1 8 記載の燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【請求項 2 0】 第 1 のコート層を形成する前記卑金属は、前記第 1 のコート層上に前記第 2 のコート層が形成された条件下において、その表面が酸化されて不動態層を形成し得る金属である

請求項 1 8 または 1 9 記載の燃料電池用ガスセパレータの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【 0 0 0 1 】

【発明の属する技術分野】

本発明は、燃料電池用ガスセパレータおよび該燃料電池用セパレータの製造方法並びに燃料電池に関し、詳しくは、単セルを複数積層して構成する燃料電池において、隣接する単セル間に設けられ、隣接する部材との間で燃料ガス流路あるいは酸化ガス流路を形成すると共に、燃料ガスと酸化ガスとを隔てる燃料電池用ガスセパレータおよび該燃料電池用セパレータの製造方法並びに燃料電池に関する。

【 0 0 0 2 】

【従来の技術】

燃料電池用ガスセパレータは、複数の単セルが積層された燃料電池スタックを構成する部材であって、十分なガス不透過性を備えることによって、隣り合う単セルのそれぞれに供給される燃料ガスおよび酸化ガスが混じり合うのを防いでいる。従来、このような燃料電池用ガスセパレータは、炭素材料あるいは金属材料を用いて製造されてきた。一般に、金属材料は強度に優れているため、炭素材料を用いる場合に比べてより薄いガスセパレータを製造することが可能であり、ガスセパレータを薄くすることによって、燃料電池全体を小型化することが可能となる。また、金属製のガスセパレータは、金属板をプレスするという簡便な方法

によって製造することができるため、製造工程を簡素化・短期化して生産性を向上させ、製造コストの上昇を抑えることができる。

【 0 0 0 3 】

金属製のガスセパレータを製造する際に用いる金属としては、十分な導電性と強度、および成形性を有する金属の中から適宜選択することができるが、ステンレスやアルミニウムなど、金属材料として特に広く大量に流通している金属を用いることによって、製造コストの大幅な削減が可能となる。このような金属材料を用いる場合には、通常は、燃料電池が動作する環境下での耐食性を十分に確保するための構成が要求される。ガスセパレータの耐食性を向上させるための構成としては、ガスセパレータの表面を、銀によって被覆する構成が提案されている（例えば、特開昭 6 0 - 1 1 5 1 7 3 号公報等）。表面を銀で被覆することにより、金属製ガスセパレータの耐食性を大きく向上させることができる。

【 0 0 0 4 】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、動作している燃料電池内部の環境は、非常に強い酸性状態となり、銀によって金属製ガスセパレータの被覆を行っても、耐食性が不十分となるおそれがあった。燃料電池の内部環境を酸性化する要因としては、主として2つ考えられる。燃料電池（例えば固体高分子型燃料電池）では、電解質膜の表面に、白金や白金合金などを備える触媒層が設けられており、通常この触媒層には、上記触媒層を形成するための材料として用いた白金の硫酸塩などが残留している。従って、燃料電池の動作を開始すると、残留していた白金塩が、燃料電池内のガス流路に生じた生成水中に溶出して、燃料電池の内部環境を酸性化する。また、固体高分子型燃料電池が備える固体高分子電解質膜は、プロトン伝導性を実現する官能基としてスルホン酸基を備えているが、この固体高分子電解質膜は、燃料電池が発電を行うのに伴ってスルホン酸基の部分でごく微量ずつ徐々に分解して硫酸を生じ、燃料電池の内部環境を酸性化する。

【 0 0 0 5 】

上記のように白金塩の溶出やスルホン酸基の分解が起こると、燃料電池の内部環境は $pH 2$ 程度になるといわれており、このような強い酸性条件下では、長時

間燃料電池の運転を行う間には、イオン化傾向の小さな銀を用いてガスセパレータの被覆を行う場合であっても、耐食性が不十分となるおそれがあった。ガスセパレータの表面が腐食すると、ガスセパレータを構成する金属のイオンが溶出する。このように、ガスセパレータから金属イオン（銀、あるいは銀で被覆したガスセパレータの基板部を構成する金属のイオン）が溶出して、ごく微量であってもこの金属イオンが固体高分子電解質膜中に混入すると、電解質膜が備えるイオン交換基（スルホン酸基）に上記金属イオンが引き寄せられて、固体高分子電解質膜のプロトン伝導性を損なうことになり、燃料電池の性能を維持していく上で望ましくない。したがって、より耐食性に優れた燃料電池用ガスセパレータが望まれていた。

【 0 0 0 6 】

本発明の燃料電池用ガスセパレータおよび該燃料電池用セパレータの製造方法並びに燃料電池は、こうした問題を解決し、金属製ガスセパレータにおいて、十分な耐食性を実現することを目的としてなされ、次の構成を採った。

【 0 0 0 7 】

【課題を解決するための手段およびその作用・効果】

本発明の第 1 の燃料電池用ガスセパレータは、燃料電池内に組み込まれたときにその表面でガス流路を形成する燃料電池用ガスセパレータであって、

金属製のセパレータ基材と、

前記ガスセパレータを燃料電池内に組み込んだときに、隣接する部材と接触する接触面に対応する前記セパレータ基材表面のうち、前記隣接する部材との間の接触抵抗に関わる表面上に少なくとも形成され、貴金属によって構成される第 1 のコート層と、

炭素材料によって前記第 1 のコート層上に形成される第 2 のコート層とを備えることを要旨とする。

【 0 0 0 8 】

また、本発明の第 1 の燃料電池用ガスセパレータの製造方法は、燃料電池内に組み込まれたときにその表面でガス流路を形成する燃料電池用ガスセパレータの製造方法であって、

(a) 所定の形状を有する金属製のセパレータ基材を成形する工程と、

(b) 前記 (a) 工程で得た前記セパレータ基材表面において、前記ガスセパレータを燃料電池内に組み込んだときに隣接する部材と接触する接触面に対応する前記セパレータ基材表面のうち、少なくとも、前記隣接する部材との間の接触抵抗に関わる表面上に、貴金属からなる第 1 のコート層を形成する工程と、

(c) 前記 (b) 工程で形成した前記第 1 のコート層上に、炭素材料によって第 2 のコート層を形成する工程と

を備えることを要旨とする。

【 0 0 0 9 】

以上のように構成された本発明の第 1 の燃料電池用ガスセパレータと、本発明の第 1 の燃料電池用ガスセパレータの製造方法は、前記ガスセパレータを燃料電池内に組み込んだときに、隣接する部材と接触する接触面に対応する前記セパレータ基材表面のうち、前記隣接する部材との間の接触抵抗に関わる表面上に少なくとも形成され、貴金属によって構成される第 1 のコート層を備える。したがって、このようなセパレータを構成する金属において、上記第 1 のコート層に覆われる領域、すなわち、燃料電池用ガスセパレータの導電性に関わる領域が酸化されて不動態を形成してしまうことがなく、不動態形成に起因する抵抗の増加を防ぐことができる。

【 0 0 1 0 】

また、上記第 1 のコート層を形成する貴金属は、イオン化傾向が小さく耐食性に優れた金属であるため、燃料電池用ガスセパレータにおいて、このような第 1 のコート層を形成した領域の耐食性を十分に確保することができる。特に、貴金属からなる第 1 のコート層上に、炭素材料によって構成される第 2 のコート層をさらに形成しているため、第 1 のコート層を設けた領域において、極めて高い耐食性を実現することができる。また、第 1 のコート層上に第 2 のコート層を設けることで、第 1 のコート層がさらされる環境がより穏やか (pH が中性より) となるため、十分な耐食性を実現するために必要な第 1 のコート層の厚さをより薄くすることが可能となり、単に貴金属によって耐食性を確保する場合に比べて、燃料電池用ガスセパレータを製造するためのコストを削減することができる。

【 0 0 1 1 】

なお、炭素材料によって構成される第2のコート層は、十分な導電性を実現可能な量の炭素材料を備えていればよく、第2のコート層として成形するための結着剤（バインダ）などをさらに備えることとしてもよい。

【 0 0 1 2 】

このような本発明の第1の燃料電池用ガスセパレータにおいて、前記第1のコート層の厚さは、 $0.01\mu\text{m}$ から $10\mu\text{m}$ の範囲にあることとしてもよい。メッキ層は、通常は一様でなめらかな層ではなく、微細な孔が生じている。この微細な孔は、メッキ厚を厚くするほどその形成を抑えることができるが、通常金属メッキにおいては、その厚さが $10\mu\text{m}$ 程度を越えると、上記微細な孔の形成を抑える効果は飽和状態となる。したがって、このような厚さの第1のコート層を設けることによって、燃料電池用ガスセパレータを構成し第1のコート層によって覆われる金属が、上記微細な孔を介して腐食するのを防止し、燃料電池用ガスセパレータの耐食性を効果的に確保することができる。特に、本発明の第1の燃料電池用ガスセパレータは、炭素材料によって構成される第2のコート層を備えることにより、第1のコート層に要求される耐食性が低減され、貴金属からなる第1のコート層を $1\mu\text{m}$ 以下という薄さにしても、十分な耐食性を得ることが可能となる。

【 0 0 1 3 】

本発明の第1の燃料電池用ガスセパレータ、および、本発明の第1の燃料電池用ガスセパレータの製造方法において、前記第1のコート層を構成する前記貴金属は、銀であることとしてもよい。銀は、貴金属の中では卑な金属であるが、第2のコート層をさらにその上に設けることによって銀自身は十分な耐食性を実現できると共に、銀は貴金属の中では安価な金属であるため、耐食性および導電性に優れた燃料電池用ガスセパレータを製造するのに要するコストを削減することができる。

【 0 0 1 4 】

本発明の第1の燃料電池用ガスセパレータにおいて、
前記セパレータ基材は卑金属によって構成され、

前記第 2 のコート層は、前記セパレータ基材上において、前記第 1 のコート層が形成される領域に加えて、前記燃料電池用内で前記ガス流路を形成する領域上にも形成され、

前記セパレータ基材を構成する前記卑金属は、前記第 2 のコート層が形成された条件下で、不動態を形成し得ることとしてもよい。

【 0 0 1 5 】

このような構成とすれば、第 2 のコート層が形成された条件下で不動態を形成し得る卑金属によってセパレータ基材が形成されるため、前記第 1 のコート層を設けた領域以外も、第 2 のコート層で覆うことによって十分な耐食性を備えることができる。酸化物被膜である不動態を形成する卑金属は、この不動態層を形成することによって卑金属自身は腐食から保護されるため、優れた耐食性を有している。また、このように不動態を形成する卑金属は、炭素材料によって構成される第 2 のコート層を形成することによって耐食性はさらに向上する。したがって、第 1 のコート層を設けた領域以外においても第 2 のコート層を設けることで、燃料電池用ガスセパレータ全体の耐食性を十分に確保することができる。なお、その表面に不動態を形成して優れた耐食性を示し、セパレータ基材を構成するにふさわしい成形性を有すると共に十分な強度を有する卑金属材料としては、例えばステンレスを挙げることができる。

【 0 0 1 6 】

また、本発明の第 1 の燃料電池用ガスセパレータにおいて、前記第 1 のコート層は、前記セパレータ基材上において、前記接触抵抗に関わる表面上に加えて、前記ガス流路を形成する領域上にさらに形成されることとしてもよい。このような構成とすれば、前記ガス流路を形成する領域においても、貴金属によって形成される第 1 のコート層およびこの上に形成される第 2 のコート層によって、耐食性を確保することができる。

【 0 0 1 7 】

このような本発明の第 1 の燃料電池用ガスセパレータは、少なくとも、前記セパレータ基材における前記接触抵抗に関わる表面上において、前記第 1 のコート層と前記セパレータ基材との間に、卑金属からなる第 3 のコート層をさらに備え

ることとしてもよい。

【 0 0 1 8 】

同様に、本発明の第 1 の燃料電池用ガスセパレータの製造方法において、
前記（b）工程は、

（b-1）前記第 1 のコート層を形成するのに先立って、前記セパレータ基材上の、少なくとも前記接触抵抗に関わる表面上に、卑金属からなる第 3 のコート層を形成する工程と、

（b-2）前記第 3 のコート層上に、前記第 1 のコート層を形成する工程とを備えることとしてもよい。

【 0 0 1 9 】

以上のように構成された本発明の第 1 の燃料電池用ガスセパレータ、および、本発明の第 1 の燃料電池用ガスセパレータの製造方法によれば、前記第 1 のコート層と前記セパレータ基材との間に、卑金属からなる第 3 のコート層をさらに設けることによって、セパレータ基材において、第 1 のコート層を形成した領域で腐食が進行するのをより抑えることができると共に、貴金属からなる第 1 のコート層をより薄くすることが可能となる。

【 0 0 2 0 】

このような本発明の第 1 の燃料電池用ガスセパレータにおいて、前記第 3 のコート層を構成する卑金属は、前記セパレータ基材を構成する金属よりも貴である、すなわち、イオン化傾向が小さいこととしてもよい。このような構成とすれば、イオン化傾向の大きい卑金属によってセパレータ基材を形成する場合にも、貴金属からなる第 1 のコート層をより容易に形成することができる。すなわち、イオン化傾向の大きい卑金属は、貴金属メッキを施すためのメッキ浴中で侵されるおそれがあるため貴金属メッキが困難であるが、より貴な卑金属からなる第 3 のコート層をセパレータ基材上に一旦形成することによって、貴金属メッキを容易に行なうことが可能となる。さらに、異種の金属が共存するときには卑である金属はより腐食しやすくなるおそれがあるが、より貴な卑金属からなる第 3 のコート層を設けることによって、このような効果を抑え、セパレータ全体の耐食性を確保することができる。

【 0 0 2 1 】

このような本発明の第 1 の燃料電池用ガスセパレータにおいて、

前記第 2 のコート層および前記第 3 のコート層は、前記セパレータ基材上に
いて、前記接触抵抗に関わる表面上に加えて、前記燃料電池内で前記ガス流路を
形成する領域上にさらに形成され、

前記第 3 のコート層は、前記第 2 のコート層が形成された条件下で不動態を形
成し得る卑金属によって形成されることとしてもよい。

【 0 0 2 2 】

このような構成とすれば、前記第 2 のコート層が形成された条件下で不動態を
形成し得る卑金属によって第 3 のコート層が形成されるため、前記第 1 のコート
層を設けた領域以外も、その上に第 2 のコート層を形成した第 3 のコート層を設
けることで、十分な耐食性を備えることができる。酸化物被膜である不動態を形
成する卑金属は、この不動態層を形成することで卑金属自身は腐食から保護され
るため、優れた耐食性を有している。また、第 2 のコート層がさらに設けられる
ことによって耐食性はさらに向上する。したがって、燃料電池内で前記ガス流路
を形成する領域において第 1 のコート層を設けない場合にも、この領域に、第 2
のコート層をその上にさらに形成した第 3 のコート層を設けることで、燃料電池
用ガスセパレータ全体の耐食性を十分に確保することができる。

【 0 0 2 3 】

このような本発明の第 1 の燃料電池用ガスセパレータにおいて、前記第 3 のコ
ート層の厚さは、 $0.01\mu\text{m}$ から $10\mu\text{m}$ の範囲にあることとしてもよい。メ
ッキ層は、通常は一様でなめらかな層ではなく、微細な孔が生じている。この微
細な孔は、メッキ厚を厚くするほどその形成を抑えることができるが、通常金属
メッキにおいては、その厚さが $10\mu\text{m}$ 程度を越えると、上記微細な孔の形成を
抑える効果は飽和状態となる。したがって、このような厚さの第 3 のコート層を
設けることによって、燃料電池用ガスセパレータを構成し第 3 のコート層によっ
て覆われる金属が、上記微細な孔を介して腐食するのを防止し、燃料電池用ガス
セパレータの耐食性を効果的に確保することができる。

【 0 0 2 4 】

また、本発明の第 1 の燃料電池用ガスセパレータの製造方法において、前記第 2 のコート層は、前記炭素材料の他に、耐酸性を有する樹脂あるいはゴムをバインダとして含むこととしてもよい。このような構成とすれば、燃料電池用ガスセパレータ上に第 2 のコート層を設けることによってこのガスセパレータの耐食性を向上させる効果をさらに高めることができる。すなわち、上記したようなバインダは、耐食性に優れていると共に、炭素材料によって構成される第 2 のコート層を介して水が浸透するのを防止することができるため、第 2 のコート層を浸透した水に起因して燃料電池用ガスセパレータを構成する金属が腐食してしまうのを抑えることができる。

【 0 0 2 5 】

本発明の第 2 の燃料電池用ガスセパレータは、燃料電池内に組み込まれたときにその表面でガス流路を形成する燃料電池用ガスセパレータであって

金属製のセパレータ基材と、

前記ガスセパレータを燃料電池内に組み込んだときに、隣接する部材と接触する接触面に対応する前記セパレータ基材表面のうち、前記隣接する部材との間の接触抵抗に関わる表面上に少なくとも形成され、卑金属によって構成される第 1 のコート層と、

炭素材料によって前記第 1 のコート層上に形成される第 2 のコート層とを備え

前記第 1 のコート層は、該第 1 のコート層上に前記第 2 のコート層が形成された条件下で十分に安定であって電子伝導性を有する複数の粒子を、少なくとも前記第 2 のコート層と接する側の表面上に備えることを要旨とする。

【 0 0 2 6 】

また、本発明の第 2 の燃料電池用ガスセパレータの製造方法は、燃料電池内に組み込まれたときにその表面でガス流路を形成する燃料電池用ガスセパレータの製造方法であって、

(a) 所定の形状を有する金属製のセパレータ基材を成形する工程と、

(b) 前記 (a) 工程で得た前記セパレータ基材において、前記ガスセパレータを燃料電池内に組み込んだときに隣接する部材と接触する接触面に対応する前

記セパレータ基材表面のうち、少なくとも、前記隣接する部材との間の接触抵抗に関わる表面上に、卑金属からなる第 1 のコート層を形成する工程と

(c) 前記 (b) 工程で形成した前記第 1 のコート層上に、炭素材料によって第 2 のコート層を形成する工程と

を備え、

前記 (b) 工程で形成する前記第 1 のコート層は、該第 1 のコート層上に前記第 2 のコート層が形成された条件下で十分に安定であって電子伝導性を有する複数の粒子を、少なくとも前記第 2 のコート層と接する側の表面上に備えることを要旨とする。

【 0 0 2 7 】

以上のように構成された本発明の第 2 の燃料電池用ガスセパレータ、および、本発明の第 2 の燃料電池用ガスセパレータの製造方法は、前記ガスセパレータを燃料電池内に組み込んだときに、隣接する部材と接触する接触面に対応する前記セパレータ基材表面のうち、前記隣接する部材との間の接触抵抗に関わる表面上に少なくとも形成され、卑金属によって構成される第 1 のコート層を備える。また、この第 1 のコート層は、該第 1 のコート層上に前記第 2 のコート層が形成された条件下で十分に安定であって電子伝導性を有する複数の粒子を、少なくとも前記第 2 のコート層と接する側の表面上に備える。したがって、第 1 のコート層において、この第 1 のコート層を形成する金属が酸化されて不動態を形成するなどの理由で導電性が低下することがあっても、セパレータの導電性は上記電子伝導性を有する粒子によって確保されるため、セパレータにおける抵抗の増加を防ぐことができる。

【 0 0 2 8 】

このような本発明の第 2 の燃料電池用ガスセパレータ、および、本発明の第 2 の燃料電池用ガスセパレータの製造方法において、前記電子伝導性を有する粒子は、炭素を備える粒子であることとしてもよい。

【 0 0 2 9 】

また、本発明の第 2 の燃料電池用ガスセパレータ、および、本発明の第 2 の燃料電池用ガスセパレータの製造方法において、第 1 のコート層を形成する前記卑

金属は、前記第 1 のコート層上に前記第 2 のコート層が形成された条件下において、その表面が酸化されて不動態層を形成し得る金属であることとしてもよい。

【 0 0 3 0 】

このような構成とすれば、不動態を形成する卑金属によって第 1 のコート層が形成されるため、前記第 1 のコート層を設けた領域は十分な耐食性を備えることができる。酸化物被膜である不動態を形成する卑金属は、この不動態層を形成することで卑金属自身は腐食から保護されるため、優れた耐食性を有している。また、このような第 1 のコート層上に第 2 のコート層をさらに形成することによって、耐食性はさらに向上する。したがって、このような第 1 のコート層を設けた領域においては、既述した導電性に加えて、十分な耐食性を実現することができる。

【 0 0 3 1 】

本発明の燃料電池は、積層された複数の単セルを備え、水素を含有する燃料ガスと酸素を含有する酸化ガスの供給を受け、電気化学反応によって起電力を得る燃料電池であって、

隣接する前記単セル間に設けられ、一方の単セルに供給される前記燃料ガスと、他方の単セルに供給される前記酸化ガスとが混合するのを防ぐガスセパレータを備え、

該セパレータは、請求項 1 ないし 1 5 いずれか記載の燃料電池用ガスセパレータであることを要旨とする。

【 0 0 3 2 】

このような燃料電池によれば、本発明の第 1 あるいは第 2 の燃料電池用ガスセパレータを備えるため、燃料電池が発電を行なう際に、ガスセパレータが次第に腐食したりガスセパレータの抵抗が増大することがなく、十分な性能を長期にわたって保持することができる。

【 0 0 3 3 】

【発明の実施の形態】

以上説明した本発明の構成・作用を一層明らかにするために、以下本発明の実施の形態を実施例に基づき説明する。図 1 は、本発明の好適な一実施例であるセ

パレータ 3 0 の様子を表わす説明図である。図 1 (A) は、セパレータ 3 0 の断面の形状を表わす図であり、図 1 (B) は、図 1 (A) において点線で囲んだ領域 (B) についてその構成をより詳しく表わす模式図である。本発明の第 1 実施例のセパレータ 3 0 は、ステンレスによって構成された基板部 6 0 と、この基板部 6 0 を被覆する層であって銅によって構成された下地コート層 6 2 と、この下地コート層 6 2 をさらに被覆する層であって銀によって構成された第 1 コート層 6 4 と、第 1 コート層 6 4 をさらに被覆する層であって炭素材料を含有する部材からなる第 2 コート層 6 6 とからなる。また、セパレータ 3 0 は、後述するように、その表面でガスの流路を形成可能となるような所定の凹凸形状を有している。このセパレータ 3 0 に関する詳しい説明に先立って、説明の便宜上、まず、セパレータ 3 0 を用いて構成される燃料電池について以下に説明する。

【 0 0 3 4 】

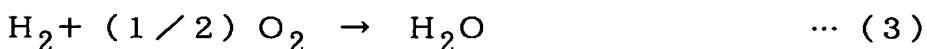
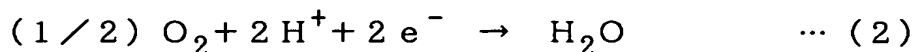
(1) 燃料電池の構成：

本発明の第 1 実施例であるセパレータ 3 0 を用いて構成した燃料電池は、構成単位である単セルを複数積層したスタック構造を有している。図 2 は、燃料電池の構成単位である単セル 2 8 の構成を例示する断面模式図、図 3 は、単セル 2 8 の構成を表わす分解斜視図、図 4 は、単セル 2 8 を積層したスタック構造 1 4 の外観を表わす斜視図である。

【 0 0 3 5 】

本実施例の燃料電池は、固体高分子型燃料電池である。固体高分子型燃料電池は、湿潤状態で良好な導電性（イオン伝導性）を示す固体高分子からなる膜を電解質層として備えている。このような燃料電池は、アノード側に水素を含有する燃料ガスの供給を受け、カソード側に酸素を含有する酸化ガスの供給を受けて、以下に示す電気化学反応を進行する。

【 0 0 3 6 】



【 0 0 3 7 】

(1) 式はアノードにおける反応、(2) 式はカソードにおける反応を表わし、燃料電池全体では(3) 式に示す反応が進行する。このように、燃料電池は、燃料電池に供給される燃料が有する化学エネルギーを直接電気エネルギーに変換するものであり、エネルギー効率が非常に高い装置として知られている。燃料電池の構成単位である単セル 2 8 は、図 2 に示すように、電解質膜 2 1 と、アノード 2 2 およびカソード 2 3 と、セパレータ 3 0 a, 3 0 b とから構成されている。

【 0 0 3 8 】

アノード 2 2 およびカソード 2 3 は、電解質膜 2 1 を両側から挟んでサンドイッチ構造を成すガス拡散電極である。セパレータ 3 0 a, 3 0 b は、このサンドイッチ構造をさらに両側から挟みつつ、アノード 2 2 およびカソード 2 3 との間に、燃料ガスおよび酸化ガスの流路を形成する。アノード 2 2 とセパレータ 3 0 a との間には燃料ガス流路 2 4 P が形成されており、カソード 2 3 とセパレータ 3 0 b との間には酸化ガス流路 2 5 P が形成されている。実際に燃料電池を組み立てるときには、上記単セル 2 8 を所定の枚数積層してスタック構造 1 4 を形成する。

【 0 0 3 9 】

図 2 では、各セパレータ 3 0 a, 3 0 b の片面においてだけガス流路を成すリブが形成されているように表わされているが、実際の燃料電池では、図 3 に示すように、各セパレータ 3 0 a, 3 0 b は、その両方の面にそれぞれリブ 5 4 およびリブ 5 5 を形成している。セパレータ 3 0 a, 3 0 b のそれぞれの片面に形成されたリブ 5 4 は隣接するアノード 2 2 との間で燃料ガス流路 2 4 P を形成し、セパレータ 3 0 の他面に形成されたリブ 5 5 は隣接する単セルが備えるカソード 2 3 との間で酸化ガス流路 2 5 P を形成する。したがって、セパレータ 3 0 a, 3 0 b は、ガス拡散電極との間でガスの流路を形成すると共に、隣接する単セル間で燃料ガスと酸化ガスとの流れを分離する役割を果たしている。このように、セパレータ 3 0 a, 3 0 b は、実際に組み立てられる燃料電池では、形態上、あるいは働きの上で区別はなく、以後、セパレータ 3 0 と総称する。

【 0 0 4 0 】

なお、各セパレータの表面に形成されたリブ 5 4, 5 5 の形状は、ガス流路を

形成してガス拡散電極に対して燃料ガスまたは酸化ガスを供給可能であれば良い。本実施例では、各セパレータの表面に形成されたリブ 5 4, 5 5 は平行に形成された複数の溝状の構造とした。図 2 では、単セル 2 8 の構成を模式的に表わすために、燃料ガス流路 2 4 P と酸化ガス流路 2 5 P とを平行に表わしたが、燃料電池を組み立てる際に実際に用いるセパレータ 3 0 では、各セパレータ 3 0 の両面で、リブ 5 4 とリブ 5 5 とがそれぞれ直交する方向となるように、リブ 5 4, 5 5 を形成した。

【 0 0 4 1 】

電解質膜 2 1 は、固体高分子材料、例えばフッ素系樹脂により形成されたプロトン伝導性のイオン交換膜であり、湿潤状態で良好な電気伝導性を示す。本実施例では、ナフィオン膜（デュポン社製）を使用した。電解質膜 2 1 の表面には、触媒としての白金または白金と他の金属からなる合金が塗布されている。

【 0 0 4 2 】

アノード 2 2 およびカソード 2 3 は、共に炭素繊維からなる糸で織成したカーボクロスにより形成されている。なお、本実施例では、アノード 2 2 およびカソード 2 3 をカーボクロスにより形成したが、炭素繊維からなるカーボンペーパーまたはカーボンフェルトにより形成する構成も好適である。

【 0 0 4 3 】

セパレータ 3 0 は、既述したように、金属製の基板部 6 0 上に 3 層のコート層が形成されている。このセパレータ 3 0 の周辺部には、4 つの穴構造が設けられている。燃料ガス流路 2 4 P を形成するリブ 5 4 を連絡する燃料ガス孔 5 0, 5 1 と、酸化ガス流路 2 5 P を形成するリブ 5 5 を連絡する酸化ガス孔 5 2, 5 3 である。燃料電池を組み立てたときには、各セパレータ 3 0 が備える燃料ガス孔 5 0, 5 1 はそれぞれ、燃料電池内部をその積層方向に貫通する燃料ガス供給マニホールドおよび燃料ガス排出マニホールドを形成する。また、各セパレータ 3 0 が備える酸化ガス孔 5 2, 5 3 は、同じく燃料電池内部をその積層方向に貫通する酸化ガス供給マニホールドおよび酸化ガス排出マニホールドをそれぞれ形成する。

【 0 0 4 4 】

以上説明した各部材を備える燃料電池を組み立てるときには、セパレータ 3 0、アノード 2 2、電解質膜 2 1、カソード 2 3、セパレータ 3 0 の順序で順次重ね合わせ、その両端にさらに集電板 3 6、3 7、絶縁板 3 8、3 9、エンドプレート 4 0、4 1 を配置して、図 4 に示すスタック構造 1 4 を完成する。集電板 3 6、3 7 にはそれぞれ出力端子 3 6 A、3 7 A が設けられており、燃料電池で生じた起電力を出力可能となっている。

【 0 0 4 5 】

エンドプレート 4 0 は、図 4 に示すように 2 つの穴構造を備えている。一つは燃料ガス供給孔 4 2、もう一つは酸化ガス供給孔 4 4 である。エンドプレート 4 0 と隣接する絶縁板 3 8 および集電板 3 6 は、エンドプレート 4 0 が備える 2 つの穴構造と対応する位置に同様の 2 つの穴構造を形成している。この燃料ガス供給孔 4 2 は、セパレータ 3 0 の備える燃料ガス孔 5 0 の中央部に開口している。なお、燃料電池を動作させるときには、燃料ガス供給孔 4 2 と図示しない燃料供給装置とが接続され、水素リッチな燃料ガスが燃料電池内部に供給される。同様に、酸化ガス供給孔 4 4 は前記セパレータ 3 0 の備える酸化ガス孔 5 2 の中央部に対応する位置に形成されている。燃料電池を動作させるときには、この酸化ガス供給孔 4 4 と図示しない酸化ガス供給装置とが接続され、酸素を含有する酸化ガスが燃料電池内部に供給される。ここで、燃料ガス供給装置と酸化ガス供給装置は、それぞれのガスに対して所定量の加湿および加圧を行なって燃料電池に供給する装置である。

【 0 0 4 6 】

また、エンドプレート 4 1 は、エンドプレート 4 0 とは異なる位置に、2 つの穴構造である燃料ガス排出孔と酸化ガス排出孔（図示せず）とを備えている。絶縁板 3 9、集電板 3 7 もまたエンドプレート 4 1 と同様の位置に、それぞれ 2 つの穴構造を形成している。エンドプレート 4 1 が備える穴構造の一つである燃料ガス排出孔は、セパレータ 3 0 の備える燃料ガス孔 5 1 の中央部に対応する位置に開口している。もう一つの穴構造である酸化ガス排出孔は、セパレータ 3 0 の備える酸化ガス孔 5 3 の中央部に対応する位置に開口している。燃料電池を動作させるときには、上記燃料ガス排出孔には図示しない燃料ガス排出装置が接続さ

れ、上記酸化ガス排出孔には図示しない酸化ガス排出装置が接続される。燃料電池の内部には、既述したように、単セル内の流路である燃料ガス流路 2 4 P と燃料ガス供給マニホールドと燃料ガス排出マニホールドとが形成されているが、これらの流路によって、燃料電池の内部では、上記燃料ガス供給孔 4 2 から燃料ガス排出孔までの間は、燃料ガスが流通可能となるように連通している。また、燃料電池の内部には、既述したように、単セル内の流路である酸化ガス流路 2 5 P と酸化ガス供給マニホールドと酸化ガス排出マニホールドとが形成されているが、これらの流路によって、燃料電池の内部では、上記酸化ガス供給孔 4 4 から酸化ガス排出孔までの間は、酸化ガスが流通可能となるように連通している。

【 0 0 4 7 】

以上説明した各部材からなるスタック構造 1 4 は、その積層方向に所定の押圧力がかかった状態で保持され、燃料電池が完成する。スタック構造 1 4 を押圧する構成については図示は省略した。

【 0 0 4 8 】

次に、以上のような構成を備えた燃料電池における燃料ガスおよび酸化ガスの流れについて説明する。燃料ガスは、上記した所定の燃料ガス供給装置から、エンドプレート 4 0 に形成された燃料ガス供給孔 4 2 を経て燃料電池内部に導入される。燃料電池内部で燃料ガスは、燃料ガス供給マニホールドを介して各単セル 2 8 が備える燃料ガス流路 2 4 P に供給され、各単セル 2 8 のアノード側で進行する電気化学反応に供される。燃料ガス流路 2 4 P から排出された燃料ガスは、燃料ガス排出マニホールドに集合して、エンドプレート 4 1 が備える既述した燃料ガス排出孔に達し、この燃料ガス排出孔から燃料電池の外部へ排出されて、所定の燃料ガス排出装置に導かれる。

【 0 0 4 9 】

同様に酸化ガスは、上記した所定の酸化ガス供給装置から、エンドプレート 4 0 に形成された酸化ガス供給孔 4 4 を経て燃料電池内部に導入される。燃料電池内部で酸化ガスは、酸化ガス供給マニホールドを介して各単セル 2 8 が備える酸化ガス流路 2 5 P に供給され、各単セル 2 8 のカソード側で進行する電気化学反応に供される。酸化ガス流路 2 5 P から排出された酸化ガスは、酸化ガス排出マ

ニホールドに集合して、エンドプレート 4 1 が備える既述した酸化ガス排出孔に達し、この酸化ガス排出孔から上記所定の酸化ガス排出装置に排出される。

【 0 0 5 0 】

(2) セパレータ 3 0 の構成：

以下に、上記燃料電池が備えるセパレータ 3 0 の構成について説明する。セパレータ 3 0 は、既述したように、基板部 6 0 と、下地コート層 6 2 と、第 1 コート層 6 4 と、第 2 コート層 6 6 とから構成されている。図 5 は、セパレータ 3 0 の製造工程を表わす説明図である。

【 0 0 5 1 】

セパレータ 3 0 を製造する際には、まず、ステンレスの薄板を機械的にプレスすることによって、その両面に所定の凹凸形状を有する基板部 6 0 を成形する（ステップ S 1 0 0）。ここで、プレス成形によって形成される凹凸形状は、セパレータ 3 0 を燃料電池に組み込んだときに、各々の面に形成された凹凸形状によって、既述した燃料ガス流路 2 4 P および酸化ガス流路 2 5 P を形成可能となるものである。ステップ S 1 0 0 においてステンレス板を機械的にプレスして所定の凹凸形状に成形した基板部 6 0 としては、ステンレス板を張り出し成形したものや曲げ加工品、あるいは、ステンレス板を部分的に打ち抜いて成形するハーフシャ品などを用いることができる。

【 0 0 5 2 】

次に、ステップ S 1 0 0 で得た基板部 6 0 に対して表面処理を施し、基板部 6 0 を構成するステンレスの表面に形成された不動態層を除去するとともに、不動態層を除去した基板部 6 0 上に、銅からなる下地コート層 6 2 を形成する（ステップ S 1 1 0）。ステンレスは、その表面に、導電性を有しない不動態層が形成されているが、このように不動態層を除去した上で下地コート層 6 2 を形成することによって、ステンレス表面に形成された不動態層に起因してセパレータ 3 0 の導電性が低下してしまう（基板部 6 0 上にさらに形成する第 1 コート層 6 4 との間の接触抵抗が上昇してしまう）のを防止している。なお、下地コート層 6 2 は、電解メッキ、無電解メッキのいずれの方法によっても形成することができる。また、本実施例では、下地コート層 6 2 の厚みは $10\ \mu\text{m}$ とした。

【 0 0 5 3 】

下地コート層 6 2 を形成すると、次に、その表面に、銀からなる第 1 コート層 6 4 を形成する（ステップ S 1 2 0）。この第 1 コート層 6 4 も、電解メッキあるいは無電解メッキなどの方法によって容易に形成することができる。本実施例では、第 1 コート層 6 4 の厚みは、 $2\mu\text{m}$ とした。

【 0 0 5 4 】

第 1 コート層 6 4 を形成すると、その表面に、炭素材料を含有する部材からなる第 2 コート層 6 6 をさらに形成し（ステップ S 1 3 0）、セパレータ 3 0 を完成する。この第 2 コート層 6 6 は、黒鉛粒子およびカーボンブラックを炭素材料として含有し、この炭素材料にバインダを混合して形成されている。ここで、用いる黒鉛としては、人造黒鉛、鱗片状黒鉛、鱗状黒鉛、土状黒鉛などを挙げることができ、カーボンブラックとしては、チャンネルブラック、ファーネスブラック、アセチレンブラック、ケッチェンブラックなどを挙げることができる。また、バインダとしては、燃料電池の内部環境（酸性条件下や所定の高温下）において十分に安定な樹脂系材料あるいはゴム系材料などを用いればよい。このような樹脂系材料としては、例えば、フッ素樹脂、アクリル樹脂、ポリエステル樹脂、ウレタン樹脂、フェノール樹脂、フェノールエポキシ樹脂などを挙げることができる。また、ゴム系材料としては、例えば、スチレンーブタジエンゴム（SBR）、ブチルゴム（IIR）、エチレンープロピレンゴム（FPDM）、フッ素ゴム、ニトリルゴム（NBR）、クロロプロピレンゴム（CR）などを挙げることができる。これらの樹脂系材料やゴム系材料を単独、あるいはこれらのうちの複数のものを組み合わせて、バインダとして用いればよい。第 2 コート層 6 6 を形成するには、上記炭素材料と溶解したバインダとを混合したものに、下地コート層 6 2 および第 1 コート層 6 4 を形成した基板部 6 0 を浸漬したり、あるいは上記混合物を第 1 コート層 6 4 上にスプレーすればよい。また、上記混合物を、カーテンフロー塗装により塗布することもできる。なお、本実施例では、第 2 コート層 6 6 の厚みは、 $40\mu\text{m}$ とした。

【 0 0 5 5 】

なお、上記した説明では、基板部 6 0 は、プレス成形によって、燃料ガス流路

2 4 P および酸化ガス流路 2 5 P を形成するための凹凸形状を、その各々の面に形成することとしたが、異なる構成とすることとしてもよい。例えば、一方の面に燃料ガス流路 2 4 P を形成するための凹凸形状を形成した薄板と、一方の面に酸化ガス流路 2 5 P を形成するための凹凸形状を形成した他の薄板とを用意し、これら 2 枚の薄板を貼り合わせることによって基板部 6 0 を形成することとしてもよい。

【 0 0 5 6 】

以上のように構成されたセパレータ 3 0 によれば、ステンレスからなる基板部 6 0 を銀からなる第 1 コート層 6 4 で覆い、さらに、炭素材料を含有する第 2 コート層 6 6 で被覆しているため、耐食性および導電性に優れた燃料電池用セパレータを得ることができる。また、このようなセパレータ 3 0 を用いて燃料電池を構成することによって、耐久性に優れ、十分な電池性能を有する燃料電池を得ることができる。

【 0 0 5 7 】

既述したように、発電を行なっている燃料電池の内部は酸性度が非常に強くなるため、このような環境下では、銀によってセパレータを被覆してもセパレータを被覆している銀自身が次第に腐食されてしまうおそれがあるが、本実施例では、銀からなる第 1 コート層 6 4 をさらに第 2 コート層 6 6 によって被覆しているため、銀がさらされる環境がより穏やか（p H が中性より）になり、第 1 コート層 6 4 が腐食してしまうのを十分に抑えることができる。第 2 コート層 6 6 は炭素材料をバインダによって結着させてなり、この第 2 コート層 6 6 は、第 1 コート層 6 4 の表面が直接燃料電池の内部環境にさらされるのを防いでいる。ここで、第 2 コート層 6 6 を構成している炭素材料は、ごく微量の水を徐々に浸透させる性質を有しており、さらに、炭素材料とバインダとの界面を介してもごく微量の水が徐々に浸透するおそれがあるが、第 1 コート層 6 4 上に第 2 コート層 6 6 を設けることで、第 1 コート層 6 4 の表面とセパレータ 3 0 の表面（第 2 コート層 6 6 の表面）との間には、十分なプロトン濃度勾配が生じ、セパレータ 3 0 の周囲の環境が p H 2 となった場合にも、第 2 コート層 6 6 に覆われた第 1 コート層 6 4 の表面は、はるかに穏やかな（p H が中性よりの）環境となる。このよう

な環境下では、上記した燃料電池の内部環境に直接さらされる場合とは異なり、イオン化傾向が非常に小さい貴金属である銀は十分に安定である。したがって、銀によって形成される第1コート層64は、燃料電池の内部が上記したように酸性度が強い状態となり、第2コート層66が備える炭素材料を介して水が浸透してきても、燃料電池の運転中に腐食が進行してしまうおそれがない。このように第1コート層64が腐食するのを防止できることにより、第1コート層64によって覆われる下地コート層62および基板部60が腐食するのを十分に抑えることができる。炭素材料とバインダとからなる第1コート層64も十分な耐食性を有しているため、セパレータ30全体は高い耐食性を示し、これを用いる燃料電池の耐久性も充分となる。

【0058】

なお、炭素材料を備える第2コート層66は、上記したように第1コート層64における腐食の進行を十分に抑えるという効果に加えて、第1コート層64の表面において、燃料電池が長時間発電を行なう間にたとえ腐食によってごくわずかな金属イオン（銀イオン）が第1コート層64の表面から溶出した場合にも、この溶出した金属イオンが第2コート層66を透過してセパレータ外に排出されるのを抑えるという効果を有している。このように、耐食性に優れた銀によって第1コート層64を形成し、炭素材料を備える第2コート層66によって第1コート層64を被覆することで、セパレータ（を形成する金属部）の腐食の進行を抑えると共に、微量に生じる金属イオンに起因する問題が生じるのを抑えることができるため、このようなセパレータ30を用いることで、耐久性に優れた燃料電池を得ることができる。

【0059】

また、第1コート層64を構成する銀は、酸化されて不動態を形成することがないため、第2コート層66が備える炭素材料を介して第1コート層64の表面にまで水が浸透しても、この水による酸化を受けて第1コート層64の表面に不動態層が形成され、セパレータ30の導電性が低下してしまうことがない。すなわち、金属は、水や酸素の存在下において、腐食して金属イオンが溶出する他に、その表面に導電性が不十分である酸化物被膜を形成する場合があるが、貴金属

である銀は、非常に安定であるため酸素との親和力が弱く、不動態を形成することがない。第1コート層64の下に形成された下地コート層62は、第1コート層64によって覆われているため、この下地コート層62もまた、表面に不動態層が形成されてセパレータ30の導電性を低下させてしまうことがない。また、基板部60を構成するステンレスは、本来その表面が不動態層によって覆われているが、基板部60上に下地コート層62を形成する際に、この不動態層を取り除いた上で下地コート層62を形成しているため、基板部60表面の不動態層に起因してセパレータ30の導電性が低下してしまうことがない。もとより、第2コート層66が備える炭素材料もまた、電池環境下で不動態層を形成することがないため、燃料電池の動作中にセパレータ30の表面で接触抵抗が上昇することがなく、セパレータ30を備える燃料電池の内部抵抗が上昇してしまうことがない。なお、これら金属の腐食および不動態形成に関しては、後でさらに詳しく説明する。

【0060】

なお、後述するように、貴金属の中でも最もイオン化傾向が小さい金は、燃料電池の内部環境においても、腐食することも不動態を形成することもない。したがって、燃料電池用ガスセパレータの耐食性を十分に確保することは、金によって構成され、基板部を保護するのに十分な厚さを有する貴金属層をセパレータ上に形成することによっても実現可能であるが、上記実施例の構成とすることで、セパレータを製造するためのコストを十分に抑えることが可能となる。すなわち、本実施例の構成によれば、炭素材料を備える第2コート層66によって第1コート層64を被覆するため、貴金属層である第1コート層64の厚みを、金によって基板部を保護する場合に要する貴金属層の厚みに比べてはるかに薄く（貴金属量を少なく）することができる。また、第1コート層64を第2コート層66で覆うことによって、必ずしも金を用いる必要がなくなり、金よりは卑であるがより安価な貴金属である銀を用いて第1コート層64を形成することにより、十分な耐食性を実現することができる。

【0061】

もとより、本実施例のセパレータ30において、銀に代えて金を用いて第1コ

ート層 6 4 を形成しても、金からなる貴金属層だけによってセパレータの耐食性を確保する構成に比べてはるかに金の層（第 1 コート層 6 4）の厚さを薄くしてコストを抑えつつ、十分に耐食性に優れたセパレータを得ることができる。

【 0 0 6 2 】

なお、金属のメッキ層は、微少な孔であるピンホール（以下、メッキのマイクロ欠陥と呼ぶ）を有しており、このメッキのマイクロ欠陥を介して、メッキ層の下側の層において腐食が進行するおそれがあるため、一般には、メッキ層の厚さを十分に確保することによってこのメッキ層のマイクロ欠陥を減少させ、メッキ層の下側の層が腐食するのを防止する。本実施例のセパレータ 3 0 では、第 1 コート層 6 4 と基板部 6 0 との間に、卑金属の中では比較的イオン化傾向が小さい銅からなる下地コート層 6 2 を設けているため、第 1 コート層 6 4 において多少のメッキのマイクロ欠陥があっても、下地コート層 6 2 によって基板部 6 0 が保護される。したがって、第 1 コート層 6 4 の厚さを抑えつつ基板部 6 0、ひいてはセパレータ 3 0 全体の耐食性を十分に確保することができる。もとより、第 1 コート層 6 4 の厚さが基板部 6 0 を保護するのに十分な厚さであれば、下地コート層 6 2 は設けないこととしてもよい。第 1 コート層 6 4 の厚さや、下地コート層 6 2 の厚さ、あるいは下地コート層 6 2 の有無は、貴金属からなる第 1 コート層 6 4 の厚さを、腐食を防ぐのに十分な厚さにするのに要するコストと、一旦卑金属でメッキして下地コート層 6 2 を形成するのに要するコスト、あるいは要求する耐食性の程度などに応じて適宜選択すればよい。

【 0 0 6 3 】

また、本実施例のセパレータ 3 0 では、基板部 6 0 はステンレスによって構成したが、導電性や成形性に優れた他の金属、例えばアルミニウムなどによって構成することとしてもよい。ここで、アルミニウムのようにイオン化傾向の大きな金属によって基板部 6 0 を構成する場合には、イオン化傾向が非常に小さい貴金属を直接メッキすることが困難であるため（メッキ浴によって基板部 6 0 が侵されるおそれがあるため）、よりイオン化傾向の小さな卑金属によって下地コート層 6 2 を形成することによって、貴金属からなる第 1 コート層 6 4 の形成を容易にすることができる。

【 0 0 6 4 】

図 6 は、炭素材料を備える第 2 コート層 6 6 の構成を模式的に表わす説明図である。図 6 に示すように、第 2 コート層 6 6 は、黒鉛粒子同士の間、これより粒子の大きさが小さいカーボンブラックが配設されてなり、このように第 2 コート層 6 6 の厚さ方向にわたって炭素材料が互いに接続して積み重なることによって、第 2 コート層 6 6 全体で十分な導電性を確保している。ここで、炭素材料を結着させるバインダは、耐食性に優れており、また、炭素材料からなる粒子間の隙間を埋めることによって、炭素粒子間の隙間を通じて水が浸透するのを防止する役目を果たしている。このように、充分量のバインダを用いることによって、第 1 コート層 6 4 にまで到達する水の量を十分に抑えることができ、これによってセパレータ 3 0 全体の耐食性を向上させることができる。したがって、第 2 コート層 6 6 が備える炭素材料の量とバインダの量とは、第 2 コート層 6 6 全体で十分な導電性が確保できる範囲で適宜選択すればよい。

【 0 0 6 5 】

なお、セパレータ 3 0 においては、燃料電池内で隣接する部材と接触する領域で十分な導電性が確保されていればよい。したがって、第 2 コート層 6 6 では、少なくとも、上記隣接する部材と接触する領域において充分量の炭素材料を備えていればよく、それ以外の領域では、必ずしも充分量の炭素材料を備えている必要はない。セパレータの導電性に関与しない領域では、単に充分量のバインダを備えることによって、下側の金属層を保護しその腐食を抑える効果を得ることができる。また、炭素材料を備える第 2 コート層 6 6 は、セパレータ外部の環境から遮断して下側の層を保護する性能が十分に確保できるならば、バインダを用いることなく形成することとしてもよい。例えば熱膨張黒鉛は、層構造を成す周知の炭素材料であって、加圧を行なうだけでバインダを用いなくても互いに結着させることができるが、この熱膨張黒鉛を加圧してなる層を浸透する水の量が許容範囲であれば、バインダを用いずに熱膨張黒鉛を加圧成形することによって第 2 コート層 6 6 を形成することも可能である。

【 0 0 6 6 】

(3) 金属の腐食性に関する説明：

以下に、セパレータを構成し得る金属と、腐食および不動態形成との関係について説明する。既述したように、腐食とは、環境中に水や酸素などが存在することによって金属が酸化され、金属イオンが溶出する現象を指す。また、不動態の形成とは、同じく環境中に水や酸素などが存在する場合に、金属の表面が酸化されて酸化物被膜（不動態被膜）を形成することを指す。ここで、金属が腐食すると、既述したように、腐食によって溶出した金属イオンが固体高分子電解質膜には入り込んで電池性能を低下させてしまう。また、不動態が形成されると、不動態は十分な導電性を有しないためセパレータの導電性が低下し（セパレータと隣接部材との間の接触抵抗が増加し）、電池性能を低下させてしまう。したがって、燃料電池の性能低下を引き起こさない十分な耐久性をセパレータが備えるには、上記した腐食を受け難く（耐食性に優れ）高い導電性を有する（不動態を形成しない）ことが必要である。

【 0 0 6 7 】

金属が、腐食や不動態の形成を起こすかどうかは、その金属のエネルギー状態が、どのような反応によってより安定な状態となるかということと、その金属の反応性によって決まる。すなわち、その金属が腐食することによってエネルギー状態が安定化する場合には腐食が進行し、不動態形成によってエネルギー状態が安定化する場合には不動態を形成し、このような反応を起こさない状態がエネルギー的に安定であれば腐食も不動態形成も起こらない。また、腐食と不導体形成のうちのいずれかの反応を起こす状態がエネルギー的に安定となる場合には、その反応が進行する速度は、金属のイオン化傾向や酸素との親和力に従って定まる。

【 0 0 6 8 】

それぞれの金属は、その金属がおかれた環境に応じて、いずれの反応を起こすのが安定であるか、あるいは、反応を起こさないことが安定であるか、ということが定まっている。種々の金属に関するこのような性質を図 7～図 10 に示す。図 7～図 10 は、それぞれの金属を、pH や電位の異なる種々の環境下においたときに、どのような状態がより安定であるかを表わしており、以下、このような図を腐食図と呼ぶ。これらの腐食図においては、金属が腐食する状態がエネルギー的に安定である領域を腐食域と呼び、酸素と結びついて不動態を形成する状態が

エネルギー的に安定である領域を不動態域と呼び、これらの反応を起こさない状態がエネルギー的に安定である領域を安定域と呼ぶ。なお、図 8～図 10 に示した各腐食図では、腐食域、不動態域、安定域のそれぞれに付したハッチの種類については、図 7 と同一とした。

【 0 0 6 9 】

図 7 (A)、および、図 7～図 10 に示した他の腐食図では、その中央部に平行四辺形型の領域が描かれているが、この領域は水が安定して存在しうる領域（以下、水の安定化領域と呼ぶ）である。水の安定化領域ではない条件下では、水の分解が進行して、水素や酸素を発生する。燃料電池では、内部で進行する電気化学反応に伴って水が生成されるため（式（1）～（3）を参照）、燃料電池の内部環境は、当然にこの水の安定化領域内に含まれると考えられる。また、既述したように、燃料電池の内部環境は、次第に酸性側に傾き $pH 2$ 程度に達するといわれている。したがって、図 7 に示した腐食図においては、燃料電池の内部環境に相当する領域（以下、仮想的に燃料電池領域と呼ぶ）は、上記水の安定化領域内のうち、 $pH 2 \sim 7$ の範囲内に含まれると考えられる。このような燃料電池領域を含むと考えられる領域において、各金属が腐食域、不動態域、安定域のうちのいずれに属するかによって、その金属が燃料電池の内部環境でどのような影響を受けるかを知ることができる。さらに、腐食図に基づいた金属の反応性を考慮することによって、その金属を燃料電池用ガスセパレータとして用いることの是非を検討することが可能となる。

【 0 0 7 0 】

図 7 に示すように、酸化などを受けにくい安定な金属である貴金属は、水の安定化領域内で広く安定域を有している。したがって、このような貴金属を用いてセパレータを被覆することによって、セパレータの導電性を十分に維持することができる。特に金は、水の安定化領域内全体が安定域となっているため、燃料電池の内部環境に直接さらしても、金自身は腐食することも不動態を形成することもない。貴金属のうち、イリジウム、白金、ロジウム、ルテニウム、パラジウムといった白金族の貴金属は、水の安定化領域内に不動態域を有しており、燃料電池の内部環境において、不動態を形成する状態がエネルギー的に安定となる場合が

あると考えられるが、これらの貴金属は酸素との親和力が非常に小さいため、燃料電池の内部環境が不動態域に相当する状態であっても、実際に不動態を形成する速度はきわめて遅い。したがって、これらの貴金属によって上記実施例の第1コート層64を形成すれば、炭素材料を備える第2コート層66でさらにその表面を被覆することによって第1コート層64の表面はより穏やかな環境となるため、第1コート層64は腐食を受けないばかりでなく不動態の形成も十分に防止することができ、腐食を起こさず導電性の低下を引き起こさない良好なセパレータを得ることができる。

【0071】

また、貴金属のうちの銀は、水の安定化領域内に腐食域を有しており、燃料電池の内部環境において、腐食して金属イオンが溶出する状態がエネルギー的に安定となるおそれがあるが、貴金属である銀はイオン化傾向が非常に小さいため、燃料電池の内部環境が腐食域に相当する状態であっても、実際に腐食が進行する速度はきわめて遅い。したがって、銀のような貴金属によって上記実施例の第1コート層64を形成すれば、炭素材料を備える第2コート層66でさらにその表面を被覆することによって第1コート層64の表面はより穏やかな環境となるため、上記貴金属が腐食する速度はさらに遅くなり、第1コート層64は不動態を形成しないばかりでなく腐食の進行も十分に防止することができ、腐食を起こさず導電性の低下を引き起こさない良好なセパレータを得ることができる。

【0072】

図8～図10に示したように、卑金属は、水の安定化領域のほとんどは腐食域あるいは不動態域によって占められている。卑金属は、貴金属に比べてはるかにイオン化傾向が大きいいため、周囲の環境がより穏やか（pHが中性より）であっても、腐食域内にある限り腐食の速度は速い。また、卑金属は、貴金属に比べてはるかに酸素との親和力が大きいいため、周囲の環境がより穏やかであっても、不動態域内にある限り不動態を形成する速度は速い。上記のように、銀以上に貴である貴金属によって第1コート層64を形成することによって、より薄く形成することが可能な貴金属層である第1コート層64と、炭素を含有する第2コート層66とを設けることで、金属セパレータの耐食性を十分に確保することが可能

となる。

【 0 0 7 3 】

貴金属からなる第1コート層64と、炭素材料を備える第2コート層66とを備えるセパレータの耐食性および導電性（接触抵抗）について、さらに調べた結果を以下に示す。図11は、第1コート層64を構成する貴金属や、下地コート層62を構成する卑金属として種々の金属を選択して、その性能を調べた結果を表わす説明図である。ここでは、厚さ0.01 μ mで金によって形成される第1コート層64とニッケルによって形成される下地コート層62とを備えるセパレータ（セパレータA）と、厚さ0.01 μ mで金によって形成される第1コート層64と銅によって形成される下地コート層62とを備えるセパレータ（セパレータB）と、厚さ2 μ mで銀によって形成される第1コート層64と銅によって形成される下地コート層62とを備えるセパレータ（セパレータC）と、厚さ10 μ mでスズによって形成される第1コート層64とニッケルによって形成される下地コート層62とを備えるセパレータ（セパレータD）とを用いて比較を行った。これらセパレータA～Dは、炭素材料を備える第2コート層66を有しているが、さらに、上記各セパレータ（セパレータA～C）に対応して、第2コート層66を備えないセパレータ（セパレータA'～C'）についても比較を行った。なお、図11に示したセパレータでは、下地コート層62の厚さは10 μ m、第2コート層66を設ける場合にはその厚さは10 μ mとし、基板部60はアルミニウムによって形成した。

【 0 0 7 4 】

図11は、上記した各セパレータのそれぞれについて、不動態の形成に起因する接触抵抗の増加と、腐食に起因して生じる腐食電流について調べた結果を表わす。接触抵抗の変化を調べた結果とは、上記した各セパレータを燃料電池の内部環境と類似した環境中に所定時間さらし、その前後での接触抵抗の変化を調べた結果である。すなわち、第2コート層66を備えるセパレータA～Dについては、80℃でpH2の硫酸中に100時間浸漬し、第2コート層66を備えないセパレータA'～D'については、80℃でpH2の緩衝液中に24時間浸漬し、それぞれ、その前後での接触抵抗の変化を調べた。セパレータの接触抵抗の測定

は、各セパレータを、カーボクロス（既述した単セル28内で隣接する部材であるガス拡散電極に対応する）と重ね合わせて加圧しながら保持し、ここに定電流（1 A）を流してその際の電圧降下を測定し、電流値と電圧値とから抵抗値を求めて、上記した酸による処理の前後での抵抗値（接触面積を乗じた値）の変化を調べた（単位は、 $\text{m}\Omega\text{cm}^2$ ）。なお、ここでは、加圧して保持するセパレータとガス拡散電極とを合わせた全体の抵抗値を測定しており、セパレータ表面で生じる接触抵抗を含めた、燃料電池スタックの様子を反映して加圧などによる影響を受ける総合的な抵抗値によって比較を行なっている。

【0075】

また、腐食電流について調べた結果とは、燃料電池の内部環境と類似した環境中で腐食電流が生じるかどうかを調べた結果であり、これによって腐食の有無が判断できる。図12は、各セパレータについて腐食電流を測定する様子を表わす説明図である。腐食電流の測定は、試料である各セパレータを一方の電極とし、その対極として黒鉛電極を用い、pH2、80℃の硫酸中で、電氣的に接続した上記それぞれのセパレータと黒鉛電極との間に流れる（単位面積当たりの）電流を、腐食電流として測定した（単位は、 $\mu\text{A}/\text{cm}^2$ ）。それぞれのセパレータについての測定結果の数値は、図11中に、四角で囲んで示している。測定の対象としているセパレータにおいて腐食が進行するときには、腐食の進行に伴って試料であるセパレータから金属イオン（図12では M^+ と表わす）が溶出すると共に電流が流れる。対象としているセパレータが上記溶液中で腐食しないときには、理論的には上記腐食電流は値0となる。しかしながら、腐食がほとんど進行しない場合にも、実際の測定値が値0として得られることは希であり、図11に示した結果では、腐食電流の測定値が負の値であるときには、腐食は起こっておらず長期的にも十分な耐食性を有しているものと判断して図中に示す測定値に「○」印を付し、腐食電流の測定値が正の値であっても非常に小さいときには、腐食の速度は非常におそくセパレータとしての使用に耐える可能性があると判断して図中の測定値に「△」印を付し、それよりも大きな値の腐食電流を示す時には、腐食の程度が許容できないと判断して図中の測定値に「×」印を付した。なお、このような腐食電流は、炭素材料からなる第2コート層66を有するセパレー

タ（セパレータA, B, C, D）については、pH2, 80℃の硫酸中に100時間浸漬後、第2コート層66を有しないセパレータ（セパレータA', B', C'）については、同様の硫酸中に24時間浸漬後に、それぞれ測定した。

【0076】

図11に示したように、金の第1コート層64とニッケルの下地コート層62と炭素材料の第2コート層66とを備えるセパレータA、金の第1コート層64と銅の下地コート層62と炭素材料の第2コート層66とを備えるセパレータB、銀の第1コート層64と銅の下地コート層62と炭素材料の第2コート層66とを備えるセパレータCはいずれも、接触抵抗は十分に小さく、上記した硫酸の処理を行なった後も接触抵抗の増加は小さく、また、上記硫酸中に100時間浸漬した後であっても腐食電流の値は十分に小さい。これに対し、上記セパレータA～Cに対応するセパレータであって第2コート層66を有しないセパレータA'～C'は、接触抵抗はセパレータA～Cに比べて小さいものの、上記硫酸中に24時間浸漬後の腐食電流ははるかに大きい。また、スズの第1コート層64とニッケルの下地コート層62と炭素材料の第2コート層66とを備えるセパレータDは、炭素材料の第2コート層66を有するため、腐食電流は小さいものの、第1コート層64が貴金属層ではないため、接触抵抗が大きい。このように、接触抵抗の増加は、セパレータ表面を薄い貴金属層で被覆することによって十分に抑えることができるが、腐食を十分に抑えるには、薄い（例えば、0.01μm以上の厚さの）貴金属層の表面をさらに炭素材料を備える第2コート層66で被覆することが必要である。なお、セパレータA'およびB'の第1コート層64を構成する金は実質的に腐食することはない、セパレータC'の第1コート層64を構成する銀も短期的にはほとんど腐食しないため、図11でセパレータA'～C'が示す腐食電流は、下地コート層62をおよび基板部60を構成する金属が腐食した結果である。

【0077】

上記した結果とは異なり、第1コート層64を卑金属によって形成した場合には、炭素材料を備える第2コート層66によってセパレータ表面を被覆しても、第1コート層64を構成する卑金属の（図7～図10に示した）性質に従って、

腐食あるいは不動態の形成が進行する。図 1 1 に示したセパレータ D は、スズからなる第 1 コート層と、ニッケルからなる下地コート層 6 2 と備えているが、このセパレータ D は、腐食電流は生じないものの接触抵抗は非常に大きく、燃料電池用ガスセパレータとしては不適當である。図 9 (E) に示すように、スズは、水の安定化領域内の燃料電池領域を含むと思われる領域全体が不動態域となっており、スズからなる第 1 コート層 6 4 は、第 2 コート層 6 6 によって被覆されていても第 1 コート層 6 4 の表面全体で不動態を形成してしまう。なお、スズは、その表面に不動態を形成すると、この不動態によって下側の層を腐食から保護するため、セパレータ D は腐食電流を生じない。

【 0 0 7 8 】

図 1 3 (A) ~ (D) は、それぞれ、上記セパレータ A, C, A', C' についてイオンの溶出試験を行なった結果を表わす。ここでは、各セパレータをそれぞれ、pH 2、80℃の硫酸中に 24 時間浸漬し、腐食によって硫酸中に溶出した金属イオン（第 1 コート層 6 4、下地コート層 6 2、基板部 6 0 のそれぞれを構成する金属のイオン）の量を測定した。なお、図 1 3 では、各セパレータが備える基板部の表面のうち、一つの面だけが被覆されているように表わされているが、実際には、各セパレータの表面全体が、下地コート層 6 2、第 1 コート層 6 4、第 2 コート層 6 6 などによって被覆されている。また、図中の数字は、上記した 24 時間の間に硫酸中に溶出した各金属イオンの量を、セパレータの単位面積あたりで表わしたものである（単位は $\mu\text{mol}/\text{cm}^2 \cdot \text{day}$ ）。

【 0 0 7 9 】

図 1 3 (C), (D) に示すように、セパレータ A', C' では、第 1 コート層 6 4 および下地コート層 6 2 によって被覆されていても、基板部 6 0 を構成するアルミニウムのイオンは、相当量が溶出する。なお、セパレータ A' の第 1 コート層 6 4 を構成する金は、安定域にあるため自身は溶出しないが、セパレータ C' の第 1 コート層 6 4 を構成する銀は、貴金属であっても腐食域にあるためわずかに溶出が検出される。また、セパレータ A' と C' とでは、どちらも貴金属からなる第 1 コート層 6 4 を備えているが、第 1 コート層 6 4 がより厚く形成されるセパレータ C' の方が、下側の下地コート層 6 2 および基板部 6 0 を構成す

る金属の溶出量が少ない。これは、メッキ厚を厚くすることによりメッキのミクロ欠陥が減少し、下側の層がより充分に保護されるためと考えられる。

【 0 0 8 0 】

上記セパレータ A'、C' に対して、図 1 3 (A)、(B) に示すように、セパレータ A、C では、貴金属層である第 1 コート層 6 4 をさらに被覆する第 2 コート層 6 6 が設けられているため、金属イオンの溶出がほとんどなく、きわめて効果的にセパレータの腐食が抑えられている。なお、図 1 3 (A)、(B) においてセパレータ A の結果とセパレータ C の結果とを比較すると、セパレータ C の方が金属イオンの溶出量が少なく、ここでは金属イオンの溶出量は検出限界未満となっているが、これは、貴金属層である第 1 コート層 6 4 をより厚く形成することによって、金属イオンの溶出（腐食）を防ぐ効果をより高めることができるためと考えられる。

【 0 0 8 1 】

さらに、これらのセパレータを用いて構成した燃料電池の性能を調べた結果を図 1 4 に示す。図 1 4 では、既述したセパレータ A とセパレータ C とセパレータ D と、セパレータ C' のそれぞれを用いて単セルを構成し、この単セルに対して所定の負荷を接続して発電を行なわせ、単セルからの出力電圧の変化を調べた結果を示している。また、図 1 4 では、セパレータ C とセパレータ D とを備える単セルを用いて発電を行ない、その際の単セル全体の抵抗値の変化を調べた結果を併せて示している。単セルの出力電圧は、腐食が進行する場合には、金属イオンが電解質膜中に入り込むのに従って低下すると共に、セパレータにおける接触抵抗が増大する場合にも低下するため、出力電圧値の変化（低下）の様子から、セパレータの腐食状態と不動態形成の状態とを評価することができる。併せて示した単セル全体の抵抗値の変化からは、不動態の形成の様子を評価することができる。

【 0 0 8 2 】

図 1 4 に示すように、セパレータ A およびセパレータ C を用いて構成した単セルでは、長時間連続して発電を行なっても電圧降下は非常に緩やかである。また、セパレータ C を用いて構成した単セルでは、発電に伴って抵抗値が上昇するこ

ともない。したがって、これらのセパレータは、優れた耐食性を有していると共に、高い導電性を維持できるといえる。これに対し、セパレータDを用いて構成した単セルでは、時間の経過に伴う電圧降下の程度はそれほど大きくないものの、出力電圧値そのものが低い。さらに、セパレータDを用いて構成した単セルでは、発電に伴って抵抗値が大きく上昇している。これは、セパレータDを用いて構成した単セルでは、スズによって形成される第1コート層64の表面に形成される不動態層によってセパレータは腐食から保護されるものの、この不動態によって接触抵抗（燃料電池の内部抵抗）が増大することを示している。また、セパレータC'を用いて構成した単セルでは、発電に伴って顕著な電圧降下がみられる。これは、炭素材料を備える第2コート層66によってセパレータが保護されていないため、セパレータが備える各層を構成する金属が溶出して、この金属のイオンが電解質膜に入り込んでプロトン伝導性を低下させることを示している。

【0083】

ここで、貴金属である銀は、腐食域にあるものの、自身が腐食される速度は非常に遅いため、セパレータC'において表面を被覆する銀によって構成される層をより厚く形成するならば、下側の卑金属の層が腐食して金属イオンが溶出するのを抑えることができる。一般に、金属メッキにおいて、メッキのミクロ欠陥は、メッキ厚が10 μ m程度で飽和状態に近づくといわれており、これ以上の厚さの銀メッキによってセパレータを被覆すれば、下側の層を構成する卑金属の溶出を防いだ程度程度の耐食性を有するセパレータを得ることができる。これに対し本実施例のように炭素材料を有する第2コート層66をさらに設けることで、銀などからなる貴金属層（第1コート層64）をより薄くすることができると共に、たとえ貴金属（銀）自身が腐食域にあったとしても、長期的にみてもこの腐食域にある貴金属自身が腐食するおそれのない耐食性に優れたセパレータを得ることができる。

【0084】

なお、図8に示した腐食図において、炭素は水の安定化領域全体にわたって広く腐食域にあるが、炭素は酸素との親和力が非常に小さく、燃料電池の内部環境にさらされても、腐食による劣化を考慮する必要がない。また、炭素が酸素と結

びついてわずかに腐食反応が引き起こされたとしても、この反応からは二酸化炭素が生じるため、燃料電池内で悪影響を及ぼすことはなく、炭素の腐食に関しては考慮する必要はない。

【 0 0 8 5 】

(4) セパレータ 3 0 に適用可能な金属種：

以上説明したように、セパレータ 3 0 は、第 1 コート層 6 4 を構成する貴金属の種類およびその厚さを適宜選択し、図 7 ～ 図 1 0 にその腐食図を示した各金属の性質を考慮することによって、下地コート層 6 2 を構成する卑金属や基板部 6 0 を構成する卑金属として種々の組み合わせを選択し、耐食性および導電性に優れたセパレータを実現することができる。以下に、既述した各金属の性質に基づいて、セパレータ 3 0 を形成するために種々の金属を適用する構成について説明する。

【 0 0 8 6 】

本実施例のセパレータ 3 0 は、貴金属によって形成される第 1 コート層 6 4 を、炭素材料を備える第 2 コート層 6 6 によって被覆することで、優れた耐食性および導電性を実現することを特徴としている。導電性（不動態形成）の問題に関しては、基本的には、貴金属からなる第 1 コート層 6 4 を設けることによって十分に防止することができる（不動態域にある貴金属であっても、第 2 コート層によって保護される環境下では、不動態の形成が問題となるおそれはない）。また、腐食の問題に関しては、第 1 コート層 6 4 を形成する貴金属については、十分に腐食の進行を抑えることができる（既述したように、腐食域にある銀であっても、第 2 コート層 6 6 を設けることで腐食のおそれはなくなる）。第 1 コート層 6 4 よりも下の層を構成する卑金属については、腐食図に示した性質に基づいて選択することで、十分な耐食性を実現することができる。なお、第 1 コート層 6 4 を構成する貴金属を選択する際には、より安価な銀を用いることで、第 1 コート層 6 4 をより厚く形成してもセパレータ全体のコストをより削減することが可能となる。

【 0 0 8 7 】

第 1 コート層 6 4 よりも下の層を構成する金属に関しては、例えば、下地コー

ト層 62 を形成する卑金属としてより貴なものを選択すれば、これを覆う第 1 コート層 64 の厚みをより薄くしてもセパレータ全体で十分な耐食性を実現することが可能となり、また、同じ厚さの第 1 コート層 64 を備える場合にはより耐食性を向上させることができる。例えば、図 11 において、セパレータ A とセパレータ B とは同様の第 1 コート層 64 を有しているが、下地コート層 62 を構成する金属としてより貴である銅を用いたセパレータ B の方が、接触抵抗の値も小さく腐食電流も小さい。セパレータ 30 の材料コストにおいては、貴金属材料のコストが大きくなるため、貴金属層を薄くして下地コート層 62 により貴な卑金属を用いることによって、効果的にコストを削減することが可能となる。なお、異種の金属が共存する場合には、それらのイオン化傾向が大きいほど、両者の間でより卑である金属の腐食が進行してしまうおそれがあるが、下地コート層 62 として銅のようにより貴な卑金属を選択することは、第 1 コート層 64 を構成する貴金属との間のイオン化傾向の差がより小さくなるため、下地コート層 62 の腐食を抑える効果をさらに増すことになり望ましい。もとより、下地コート層 62 を構成する金属としてより卑である金属を選択する場合にも、第 1 コート層 64 をより厚く形成することによって、第 1 コート層 64 におけるメッキのミクロ欠陥を削減し、セパレータの耐食性を確保する構成も可能である。

【0088】

また、上記した下地コート層 62 を構成する卑金属の説明では、この卑金属のイオン化傾向、すなわち腐食しやすさを問題にしたが、下地コート層 62 を構成する卑金属として、不動態域にある金属を用いることによって、セパレータの耐食性を向上させることが可能である。例えば、既述したようにスズは、燃料電池領域では不動態域にあるため、腐食が進行して金属イオンが溶出することがない。また、接触抵抗を増大させる原因となるスズ表面の不動態層は、その表面に貴金属メッキを施して第 1 コート層を形成する際に取り除かれ、第 1 コート層 64 が形成された後はこの第 1 コート層 64 によってスズ表面が保護されて、再び形成されることがない。したがって、スズのように不動態域にある卑金属によって下地コート層 62 を形成することによって、優れた耐食性を有するセパレータを得ることができる。この場合には、下地コート層 62 の耐食性が充分であるた

め、貴金属からなる第1コート層64をより薄くすることが可能となる。なお、この下地コート層62の厚さは、これに被覆される基板部60の腐食を十分に防止できる厚さであればよい。

【0089】

なお、上記した説明では、セパレータにおいて下地コート層62を設けることとしたが、基板部60上に直接貴金属メッキを施すことが可能であって、この貴金属メッキからなる第1コート層64を十分な厚さに形成して、メッキのミクロ欠陥を削減し基板部の溶出を防ぐことができれば、下地コート層62は設けないこととしてもよい。また、これら各層を形成する金属の種類および各層の厚みは、セパレータに要求される耐食性の程度や許容できるコストに応じて、適宜選択すればよい。

【0090】

なお、既述した実施例では、セパレータ全体に第1コート層64や第2コート層66を設けることとしたが、必要な耐食性および導電性が確保できるならば、これらすべての層をセパレータ全体に設ける必要はない。セパレータにおいては、燃料電池内に組み込んだときに隣接する部材と接触する領域において十分な導電性が確保されており、腐食により溶出した金属イオンが固体高分子電解質膜中に入り込むのを防止できればよい。したがって、少なくとも上記隣接する部材と接触する領域において不動態の形成が防止できればよく、この領域に加えてさらにガス流路を形成する領域において腐食が防止できればよい。そのため、例えばセパレータ全体を十分な厚さのスズメッキからなる下地コート層62で覆い、上記隣接する部材と接触する領域にのみさらに貴金属からなる第1コート層64を設け、これらの領域全体を第2コート層66で覆う構成とすることができる。このような構成とすれば、ガス流路を形成する領域は、スズメッキ表面に不動態が形成されるものの十分に腐食を防止することができると共に、上記隣接する部材と接触する領域では、スズメッキを貴金属層が覆うことで十分な導電性を維持することができる。また、表面に不動態を形成したステンレスはスズと同様に腐食に対する耐性が優れているため、ステンレスからなる基板部60において、上記隣接する部材と接触する領域に貴金属からなる第1コート層64を設け、この第

1 コート層 6 4 と、流路を形成する領域とを被覆するように第 2 コート層 6 6 を設けることとしても、耐食性と導電性に優れたセパレータを得ることができる。

【 0 0 9 1 】

また、燃料電池用ガスセパレータは、既述したようにその両面で燃料ガスおよび酸化ガスの流路を形成するほかに、一方の面において、燃料電池の運転温度を調節するための冷却水を通過させる流路を形成する場合がある。このようなセパレータでは、冷却水の流路を形成する側は、必ずしも上記実施例と同様の構成にする必要はない。すなわち、冷却水を通過させる側は、単セル内部のように pH 2 といった厳しい酸性条件下にはならず、冷却水の性質に従ってほぼ中性であるため、腐食域にある卑金属であってもはるかに腐食が進行しにくい。また、固体高分子電解質膜に直接連通していないため、溶出した金属イオンが直ちに燃料電池の性能に影響することもない。したがって、冷却水の流路を形成する側は、十分な導電性を維持することができ、燃料電池を構成する部材としての十分な耐久性を有していればよく、例えば、下地コート層 6 2 のみ、あるいは、下地コート層 6 2 および第 1 コート層 6 4 を設けることとすることができる。

【 0 0 9 2 】

(5) セパレータ 1 3 0 の構成：

上記したセパレータでは、卑金属からなる下地コート層 6 2 上に、貴金属からなる第 1 コート層 6 4 を設けることによって、上記下地コート層 6 2 表面で不動態が形成されるのを抑え、セパレータの導電性を確保していたが、貴金属層を設ける以外の構成によって導電性を確保することも可能である。以下に、第 2 実施例として、既述したセパレータ 3 0 と同様の構成を有し、貴金属からなる第 1 コート層 6 4 の代わりに、導電性（電子伝導性）粒子を分散させた卑金属からなる第 1 コート層 1 6 4 を有するセパレータ 1 3 0 の構成を説明する。

【 0 0 9 3 】

図 1 5 は、第 2 実施例のセパレータ 1 3 0 の構成を表わす説明図である。セパレータ 1 3 0 は、図 1 (B) に示した第 1 実施例のセパレータ 3 0 と同様の構成を有しており、第 1 コート層 6 4 に代えて第 1 コート層 1 6 4 を備えている。この第 1 コート層 1 6 4 の構成を図 1 6 に示す。第 1 コート層 1 6 4 は、卑金属で

あるスズによって形成され、その内部に分散して黒鉛粒子を保持している。第1コート層164が備える黒鉛粒子は、第1コート層164の表面（第2コート層66と接触する側の表面）から第1コート層164の内部にわたって十分な量が分散している。スズは、図9（E）に示したように、燃料電池領域を含む水の安定化領域内で広く不動態域となっているため、上記第1コート層164の表面には、スズ酸化物からなる不動態層が形成されるが、この不動態層においても充分量の黒鉛粒子が分散保持されている。なお、セパレータ130において、第1コート層164以外の基板部60、下地コート層62、第2コート層66は、セパレータ30と同様の構成を有している。

【0094】

また、このようなセパレータ130を製造するには、図5に示したセパレータ30の製造工程において、第1コート層64を形成するステップS120に代えて、上記第1コート層164を形成する工程を行なえばよい。第1コート層164を形成するには、例えば、第1コート層164を形成するために、下地コート層62を形成した基板部60にメッキ処理を施す際に、メッキ浴中に所定量の黒鉛粒子を混合しておき、黒鉛粒子を内部に分散保持したスズメッキ層を形成させるという方法を採用することができる。あるいは、溶融させたスズに所定量の黒鉛粒子を混合し、スプレーによる吹きつけで第1コート層164を形成することとしてもよい。

【0095】

以上のように構成された第2実施例のセパレータ130によれば、導電性と耐食性に優れたセパレータを得ることができると共に、セパレータに貴金属を用いる必要もない。また、このセパレータ130を用いて、第1実施例と同様の燃料電池を構成することにより、セパレータが腐食したり酸化したりすることに起因して燃料電池の性能が低下するのを抑え、燃料電池の耐久性を向上させることができる。

【0096】

すなわち、セパレータ130の第1コート層164を形成する金属は卑金属のスズであるため、第2コート層66でさらに被覆してもその表面には酸化によっ

て不動態層が形成されてしまうが、第1コート層164が備える黒鉛粒子によって、セパレータ130全体の導電性を確保することができる。ここで、第1コート層164を形成するスズの酸化物は、所定の導電性を備えて半導体的な性質を有するが、セパレータに求められる導電性としては不十分であり、第1コート層がスズの不動態層によって被覆されてしまうと、このセパレータの抵抗は許容できない程度に上昇してしまう。本実施例では、黒鉛粒子を備えることで、第1コート層164が第2コート層66と接触する領域においてこのような不動態層が形成されても、この不動態層においては、黒鉛粒子によって上記接触する領域での導電性が確保され、セパレータ130全体の導電性も十分に保持できる。

【0097】

また、既述したように、スズは不動態域にあるため、腐食が進行する状態がエネルギー的に安定な状態とはならず、さらに、スズ表面が酸化して形成された不動態層は、スズ層の内部を保護するため、スズを備える第1コート層164を第2コート層66で被覆する本実施例のセパレータ130は、腐食に対する十分な耐性を有している。

【0098】

なお、上記第2実施例では、第1コート層164をスズによって形成したが、異なる金属によって形成してもよい。本実施例の第1コート層164を形成する金属としては、燃料電池領域において不動態域にあり、表面に不動態層を形成することによって腐食に対する耐性が充分となる金属であれば、同様の効果を得ることができる。また、第1コート層164は黒鉛粒子を備えることとしたが、このような粒子状の炭素材料の他、異なる種類の導電性粒子を備えて導電性を確保することとしてもよい。例えば、貴金属粒子や導電性セラミックの粒子を、上記黒鉛粒子の代わりに用いることとしてもよい。さらに、本実施例のセパレータ130が備える第2コート層66、下地コート層62、基板部60を構成する材料は、第1実施例のセパレータ30と同様に、種々のものを選択可能である。

【0099】

既述したように、第2実施例の第1コート層164では、不動態層が腐食に対する耐性を実現すると共に、不動態層が備える黒鉛粒子が導電性を確保している

。したがって、上記実施例では第1コート層164全体に黒鉛粒子が分散して備えられることとしたが、黒鉛粒子は、少なくとも第1コート層164表面の不動態層において導電性を確保できるように備えられていればよい。第1コート層164上に形成された不動態層の表面と、不動態層によって覆われた第1コート層164内部とが、充分量の黒鉛粒子によって良好な導通状態に保たれることによって、セパレータ全体の抵抗を抑えることができる。第1コート層164が備える黒鉛粒子量は、セパレータ130に求められる導電性の程度や、黒鉛粒子を備える第1コート層164の形成の容易さに応じて適宜決定すればよい。

【0100】

また、上記第2実施例では、第1コート層164と基板部60との間に下地コート層62を設けたが、基板部60の不動態形成速度が十分に遅ければ、あるいは、基板部60の不動態形成を考慮する必要がないならば、基板部60上に直接第1コート層164を設けることとしてもよい。この場合には、第1コート層164を介して基板部60の腐食が進行するのを防ぐために、第1コート層164を十分に厚く（例えば10 μ m以上）形成することが望ましい。また、上記第2実施例では、第2コート層66と第1コート層164と下地コート層62とをセパレータ表面全体に形成し、導電性と耐食性とを確保したが、このように各層を重ねた構造は、燃料電池内で隣接する部材（ガス拡散電極）と接触するセパレータの接触面のうち、接触抵抗に関わる面に対応する領域のみに設けることとしてもよい。このような構成としても、他の領域において異なる方法で十分な耐食性が確保できれば、セパレータ全体で、所望の耐食性と導電性を実現することができる。

【0101】

以上本発明の実施例について説明したが、本発明はこうした実施例に何等限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲内において種々なる様態で実施し得ることは勿論である。

【図面の簡単な説明】

【図1】

本発明の好適な一実施例であるセパレータ30の構成を表す説明図である。

【図 2】

単セル 2 8 の構成を表わす断面模式図である。

【図 3】

単セル 2 8 の構成を表わす分解斜視図である。

【図 4】

単セル 2 8 を積層したスタック構造 1 4 の外観を表わす斜視図である。

【図 5】

セパレータ 3 0 の製造工程を表わす説明図である

【図 6】

第 2 コート層 6 6 の構成を模式的に表わす説明図である

【図 7】

種々の金属の腐食に関わる性質を表わす説明図である。

【図 8】

種々の金属の腐食に関わる性質を表わす説明図である。

【図 9】

種々の金属の腐食に関わる性質を表わす説明図である。

【図 1 0】

種々の金属の腐食に関わる性質を表わす説明図である。

【図 1 1】

種々の金属を選択して構成したセパレータの性能を調べた結果を表わす説明図である。

【図 1 2】

腐食電流を測定する様子を表わす説明図である。

【図 1 3】

種々の金属を選択して構成したセパレータについて、イオン溶出試験を行なった結果を表わす説明図である。

【図 1 4】

各セパレータを用いて構成した燃料電池の性能を調べた結果を表わす説明図である。

【図 1 5】

セパレータ 1 3 0 の構成を表わす説明図である。

【図 1 6】

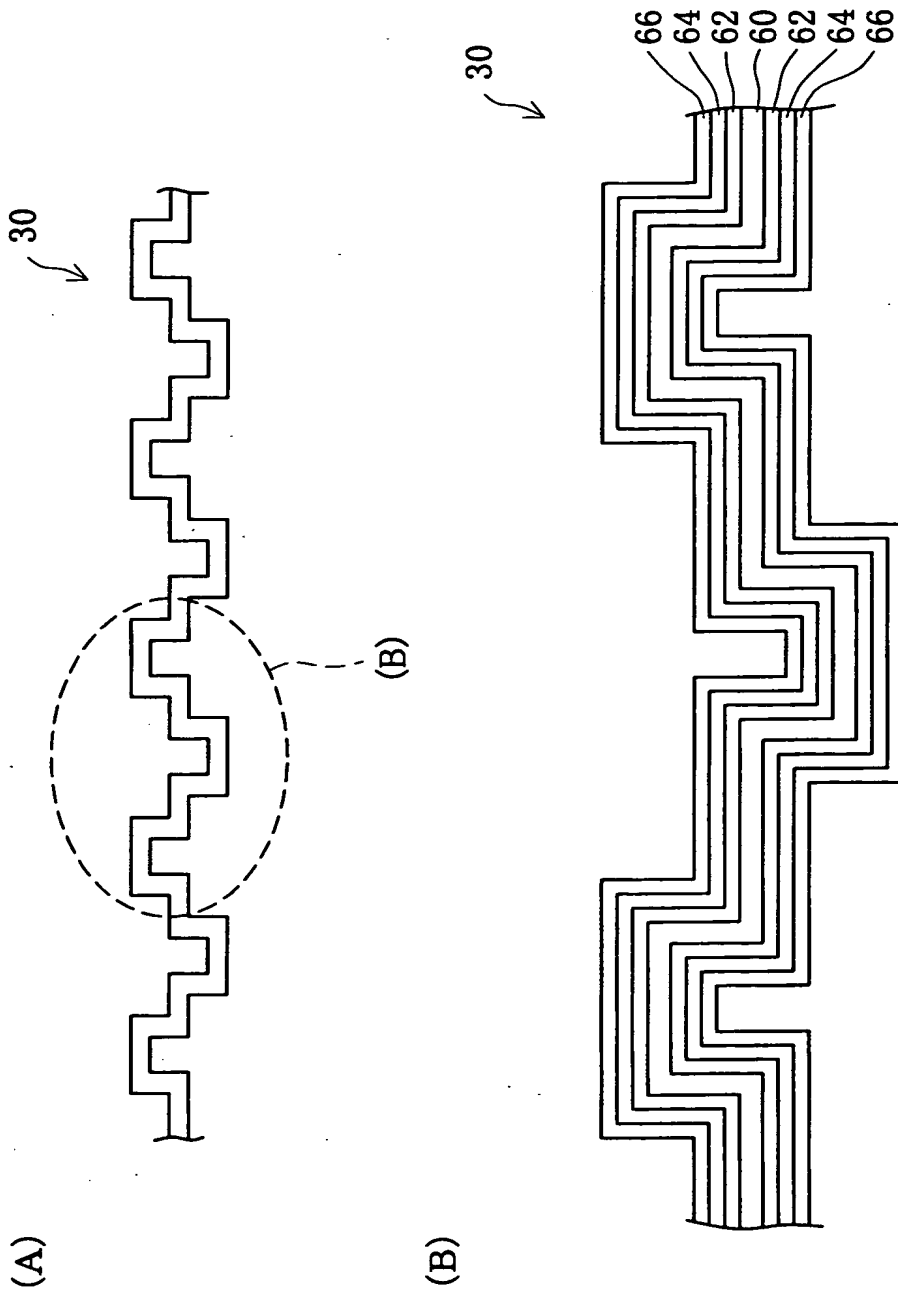
セパレータ 1 3 0 が備える第 1 コート層 1 6 4 の構成を表わす説明図である。

【符号の説明】

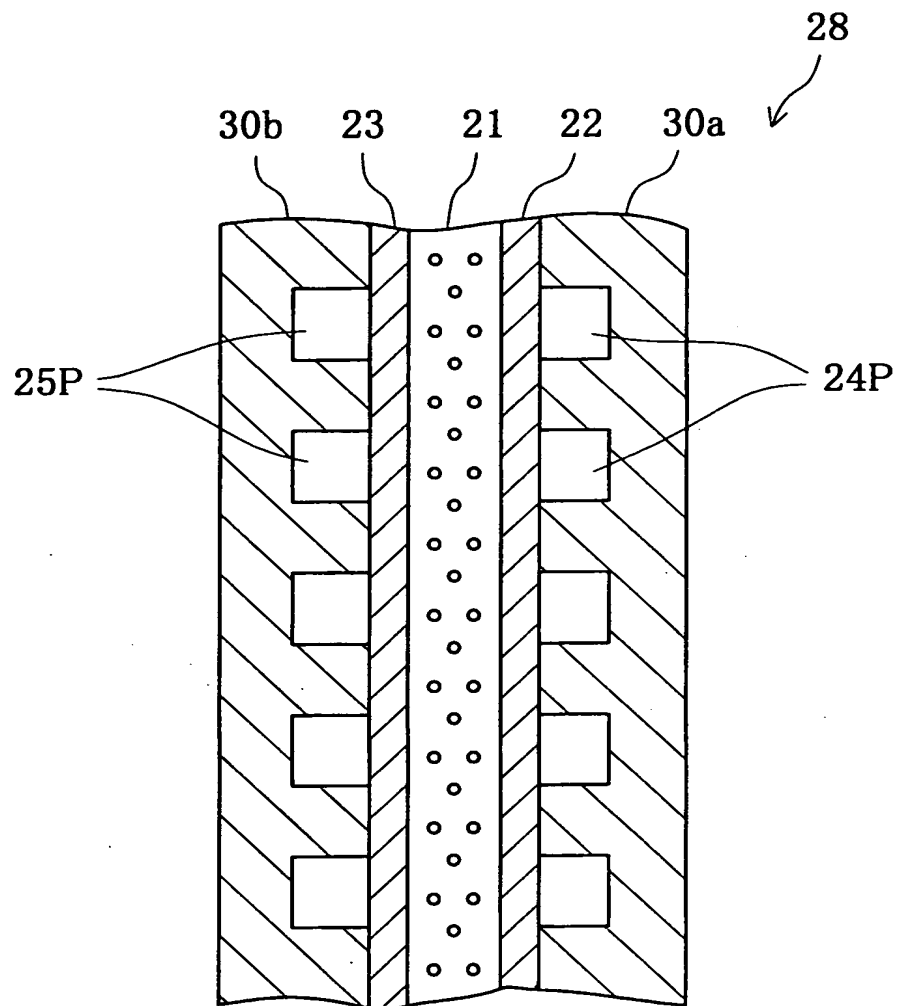
- 1 4 …スタック構造
- 2 1 …電解質膜
- 2 2 …アノード
- 2 3 …カソード
- 2 4 P …燃料ガス流路
- 2 5 P …酸化ガス流路
- 2 8 …単セル
- 3 0, 1 3 0 …セパレータ
- 3 0 a, 3 0 b …セパレータ
- 3 6, 3 7 …集電板
- 3 6 A, 3 7 A …出力端子
- 3 8, 3 9 …絶縁板
- 4 0, 4 1 …エンドプレート
- 4 2 …燃料ガス供給孔
- 4 4 …酸化ガス供給孔
- 5 0, 5 1 …燃料ガス孔
- 5 2, 5 3 …酸化ガス孔
- 5 4, 5 5 …リブ
- 6 0 …基板部
- 6 2 …下地コート層
- 6 4, 1 6 4 …第 1 コート層
- 6 6 …第 2 コート層

【書類名】 図面

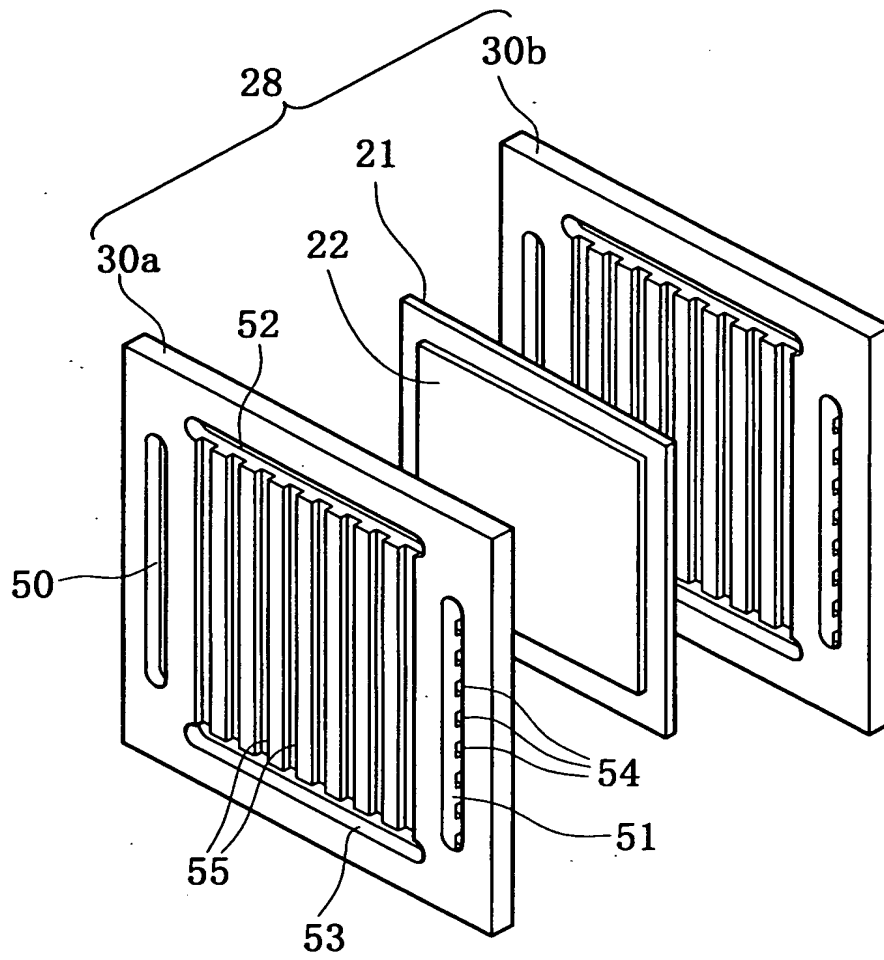
【図 1】



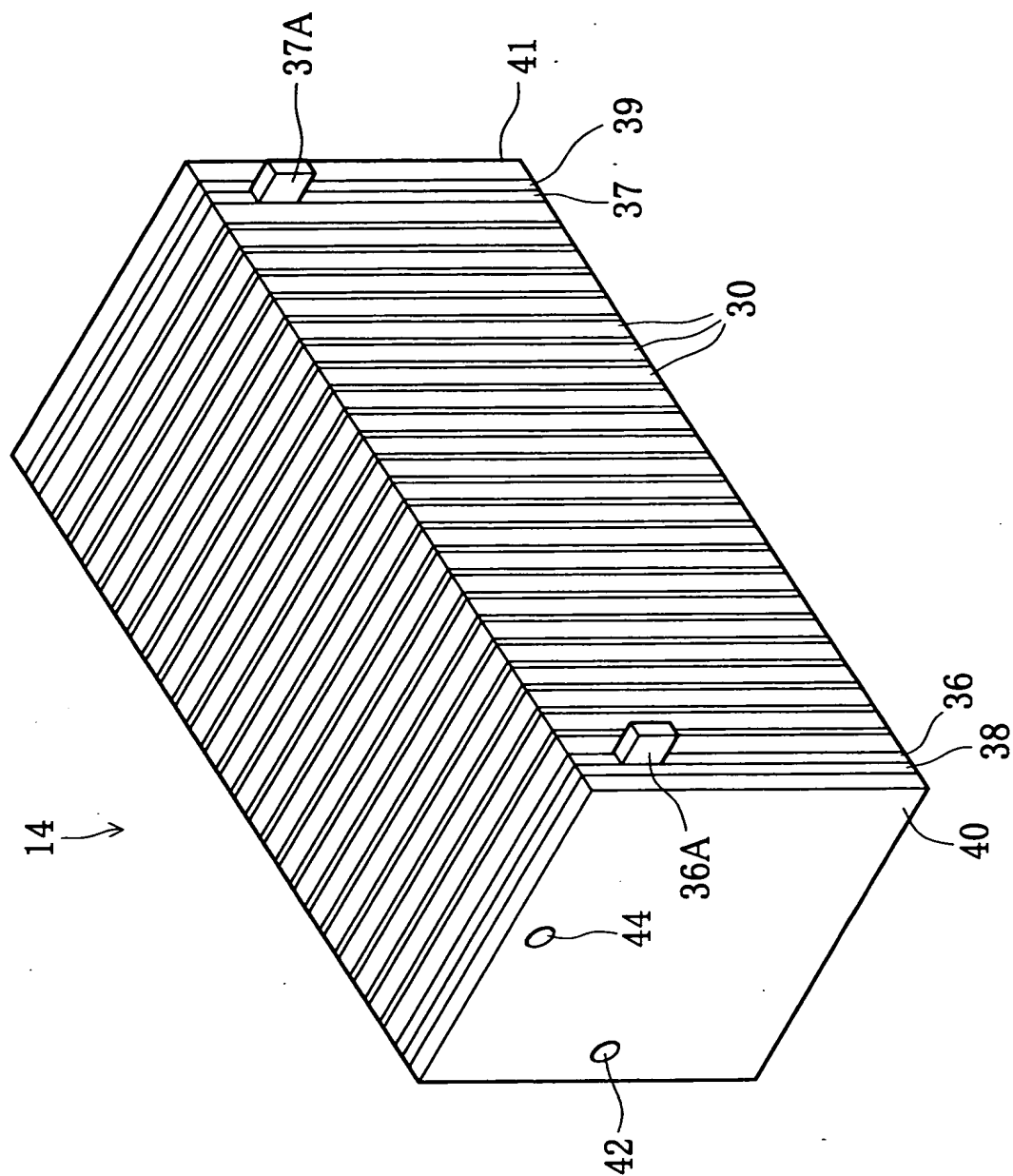
【図 2】



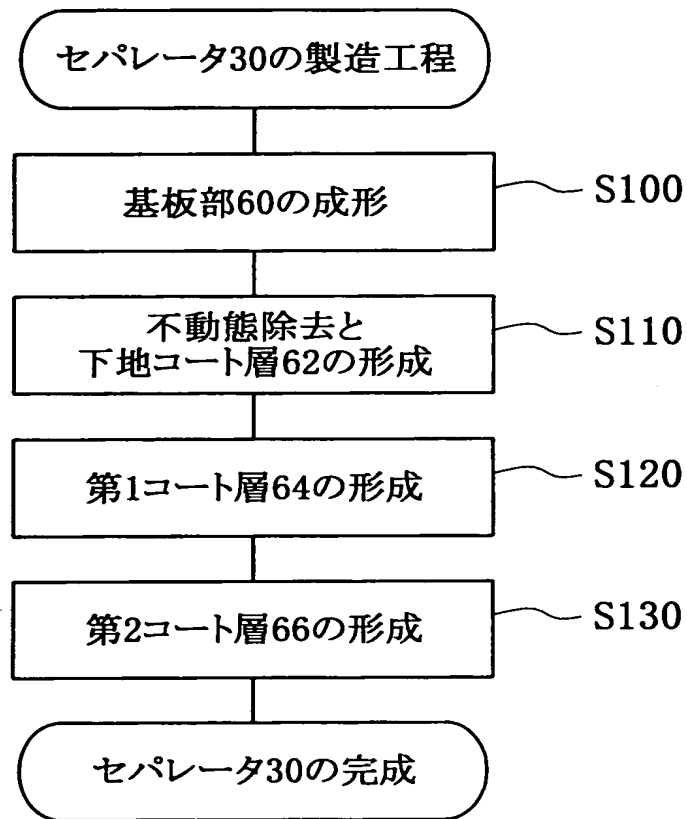
【図 3】



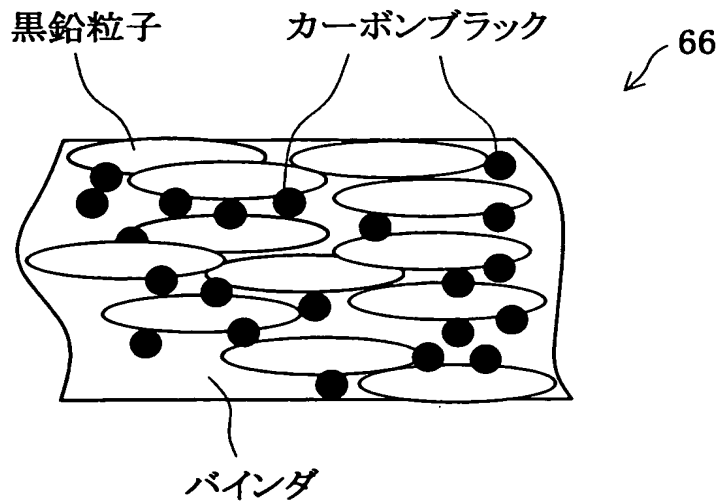
【図4】



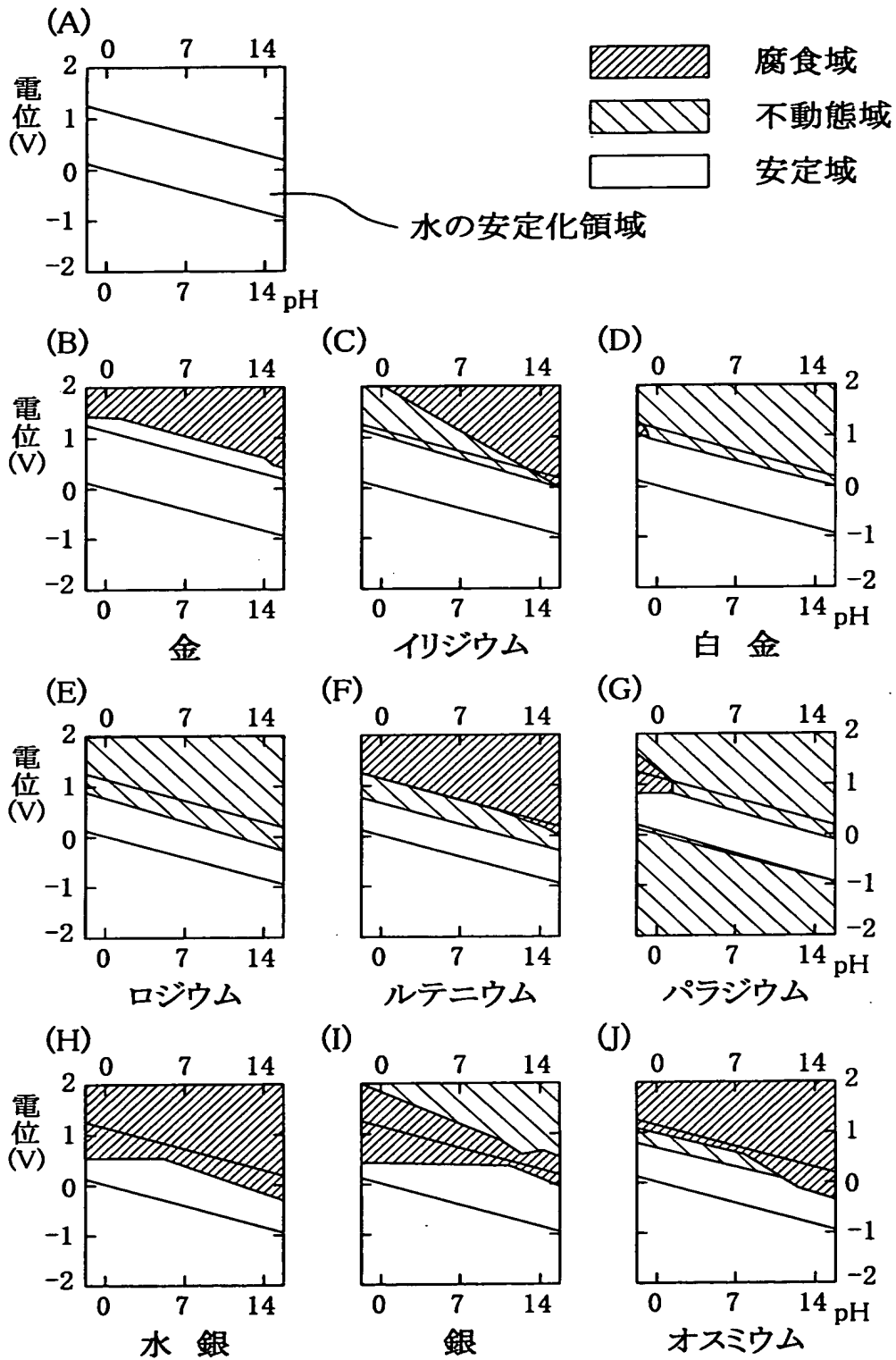
【図 5】



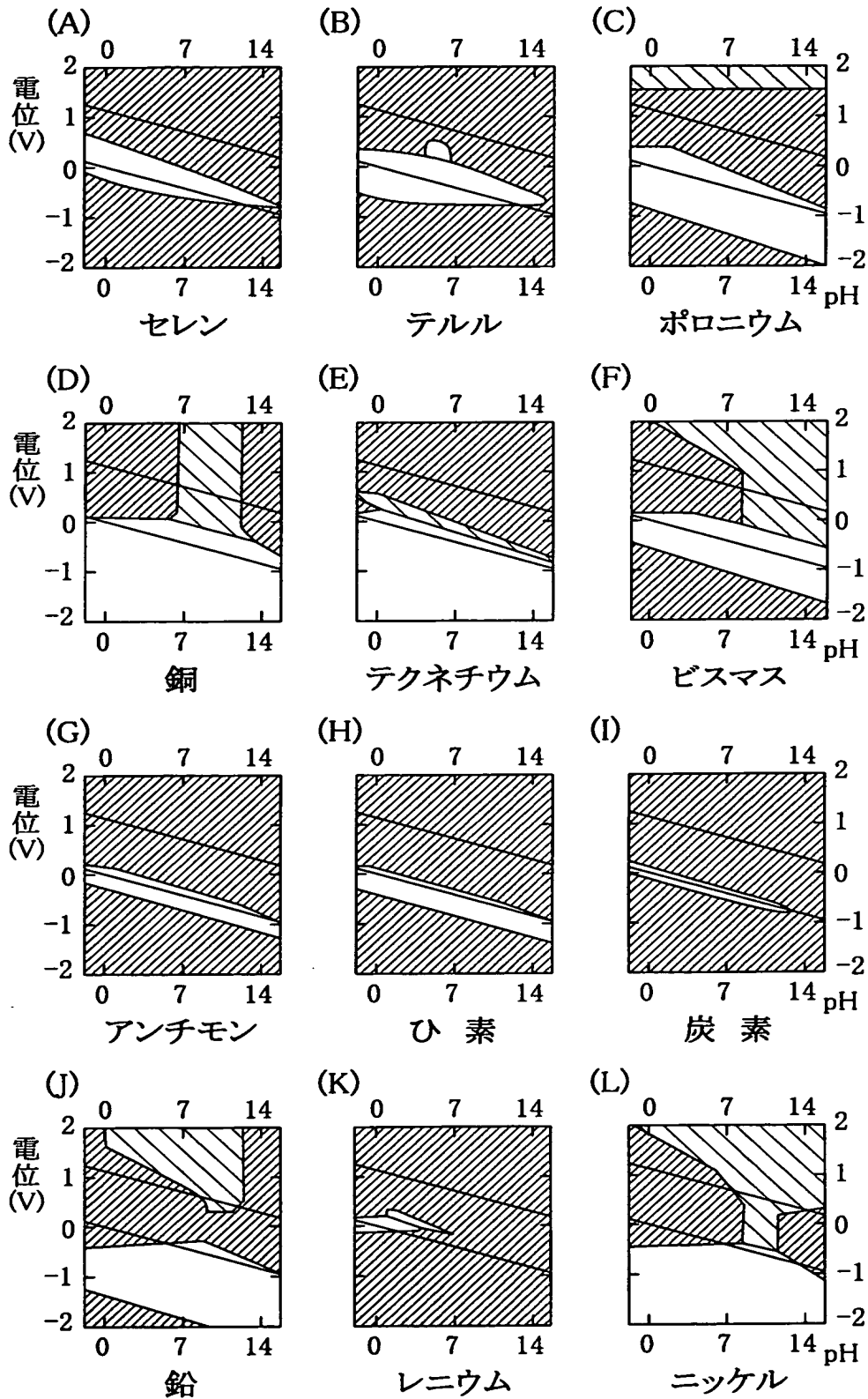
【図 6】



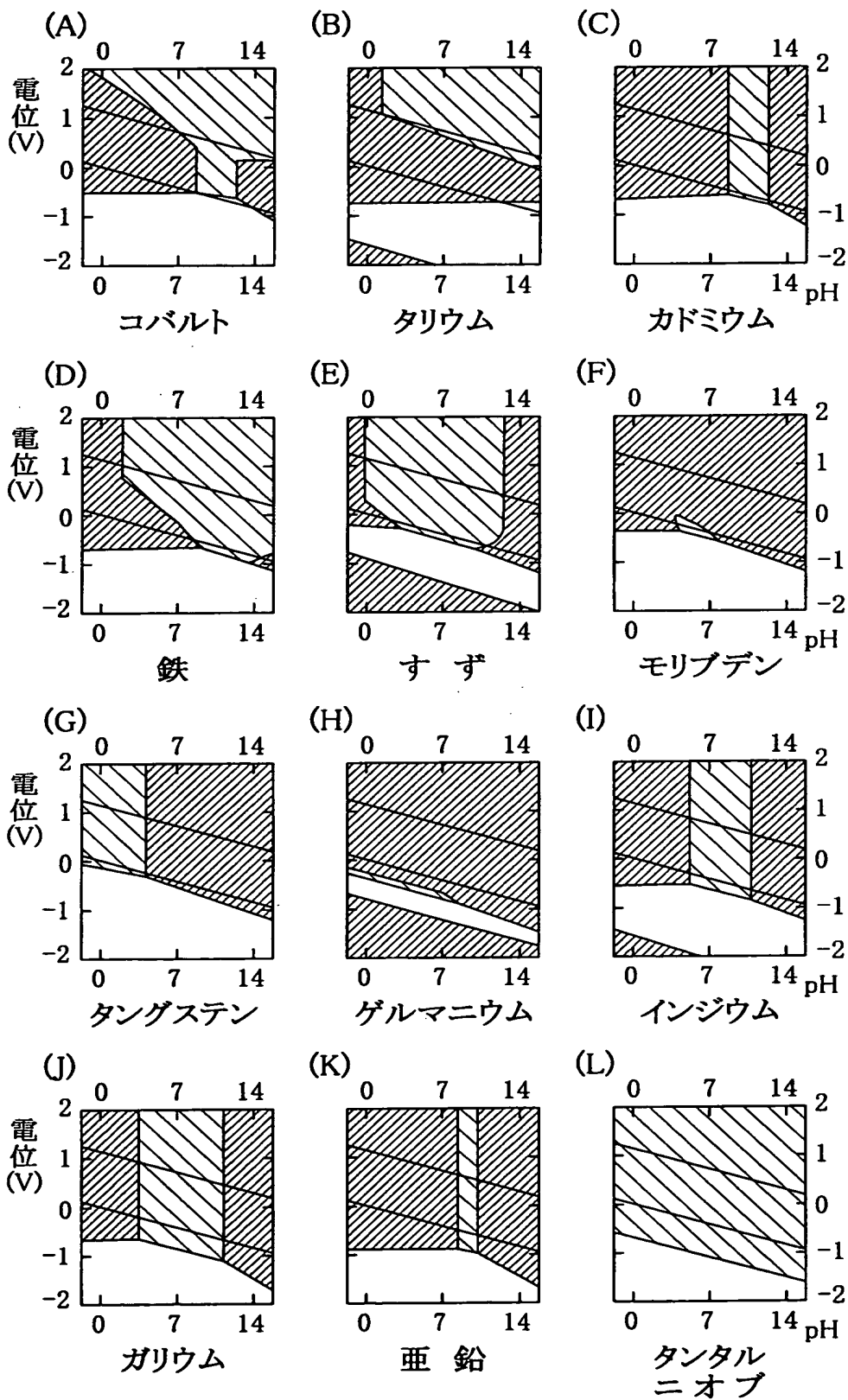
【図7】



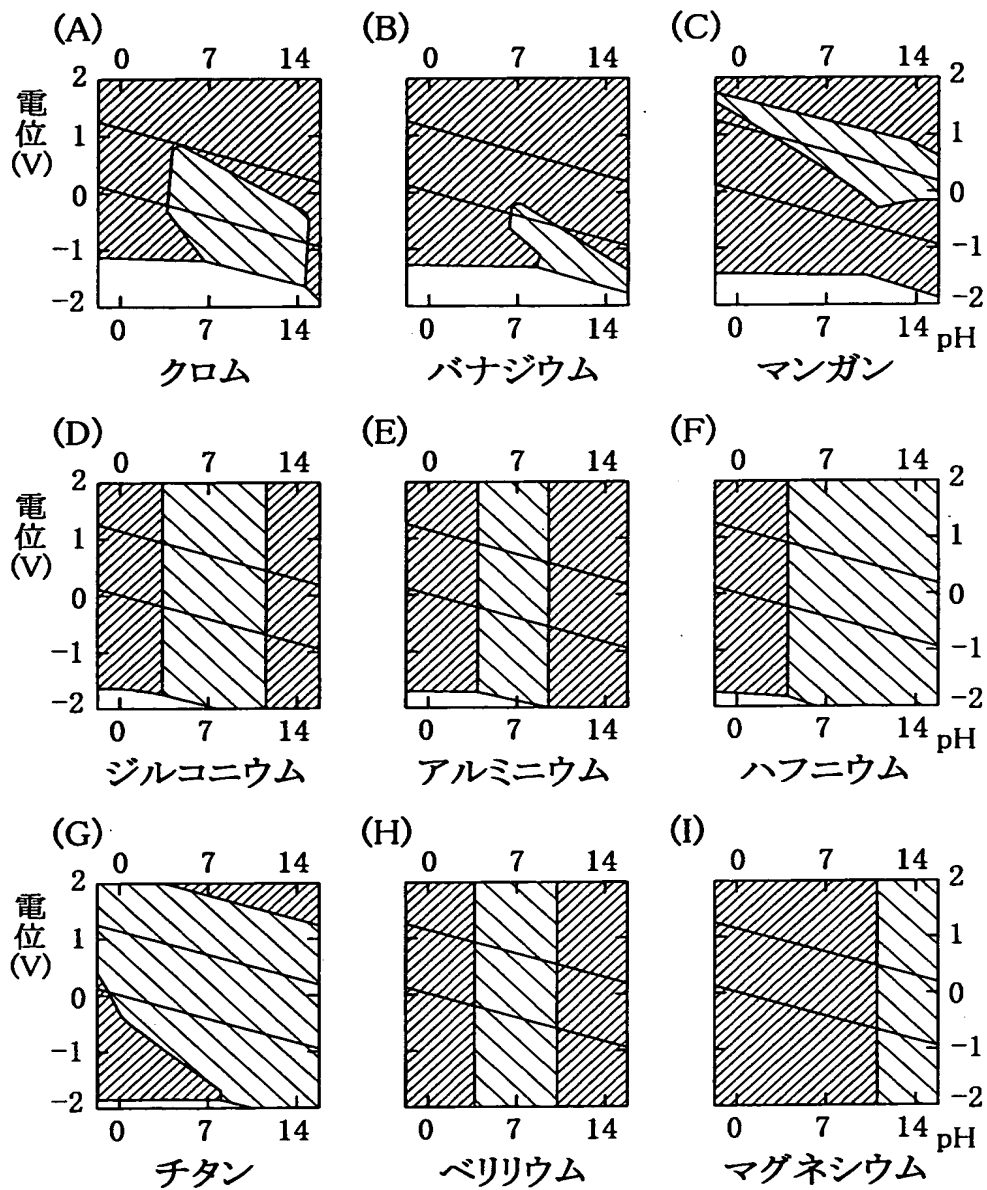
【図 8】



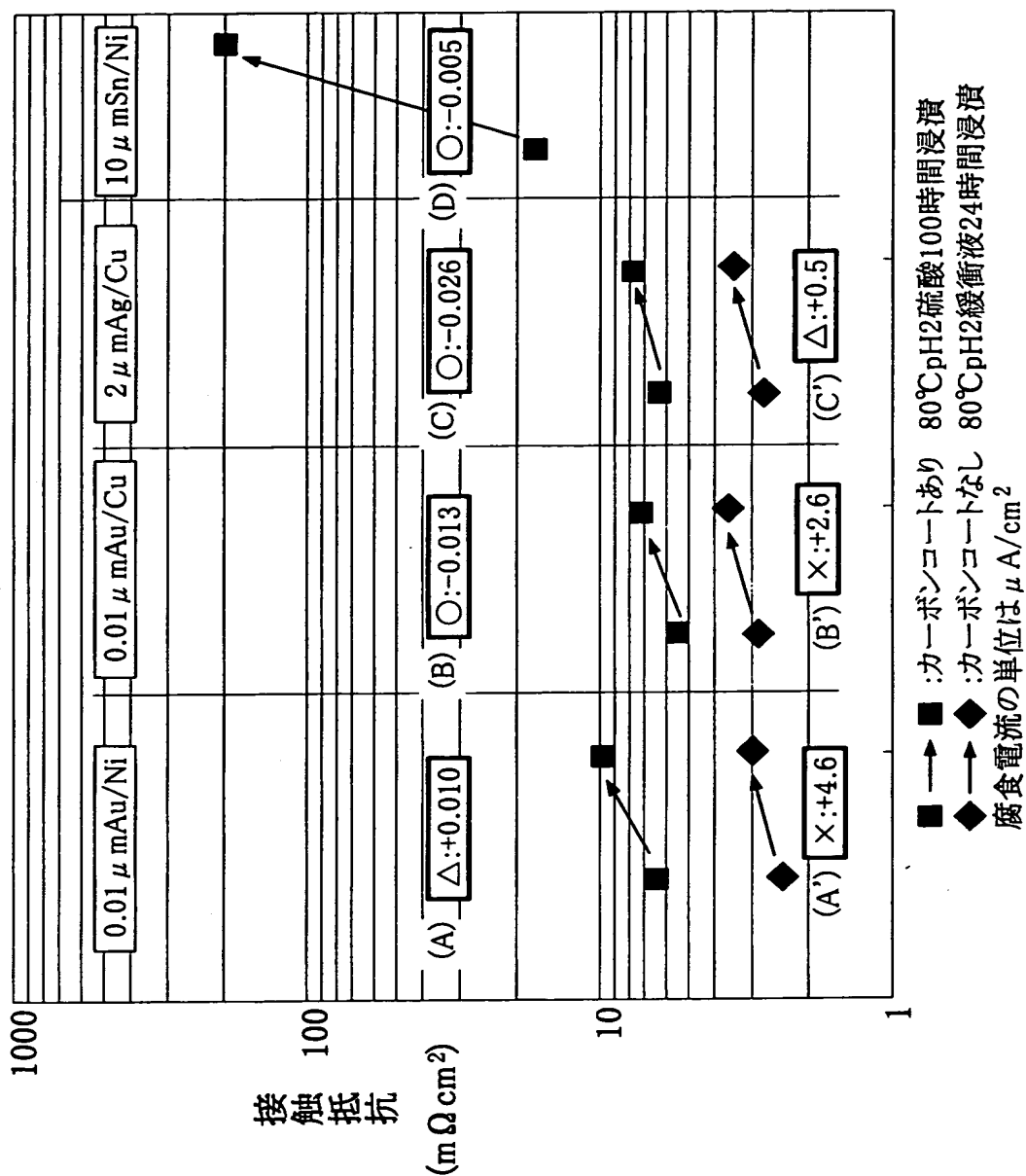
【図9】



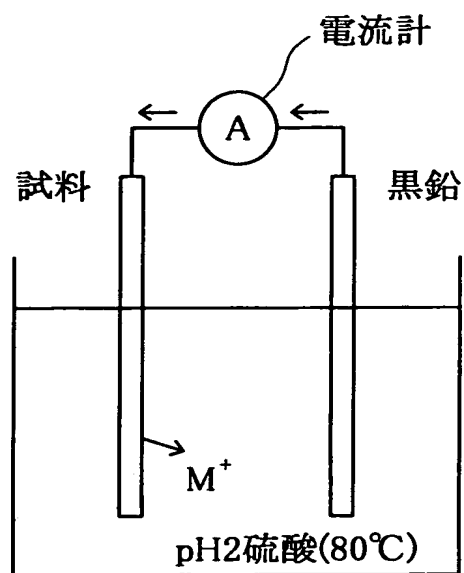
【図10】



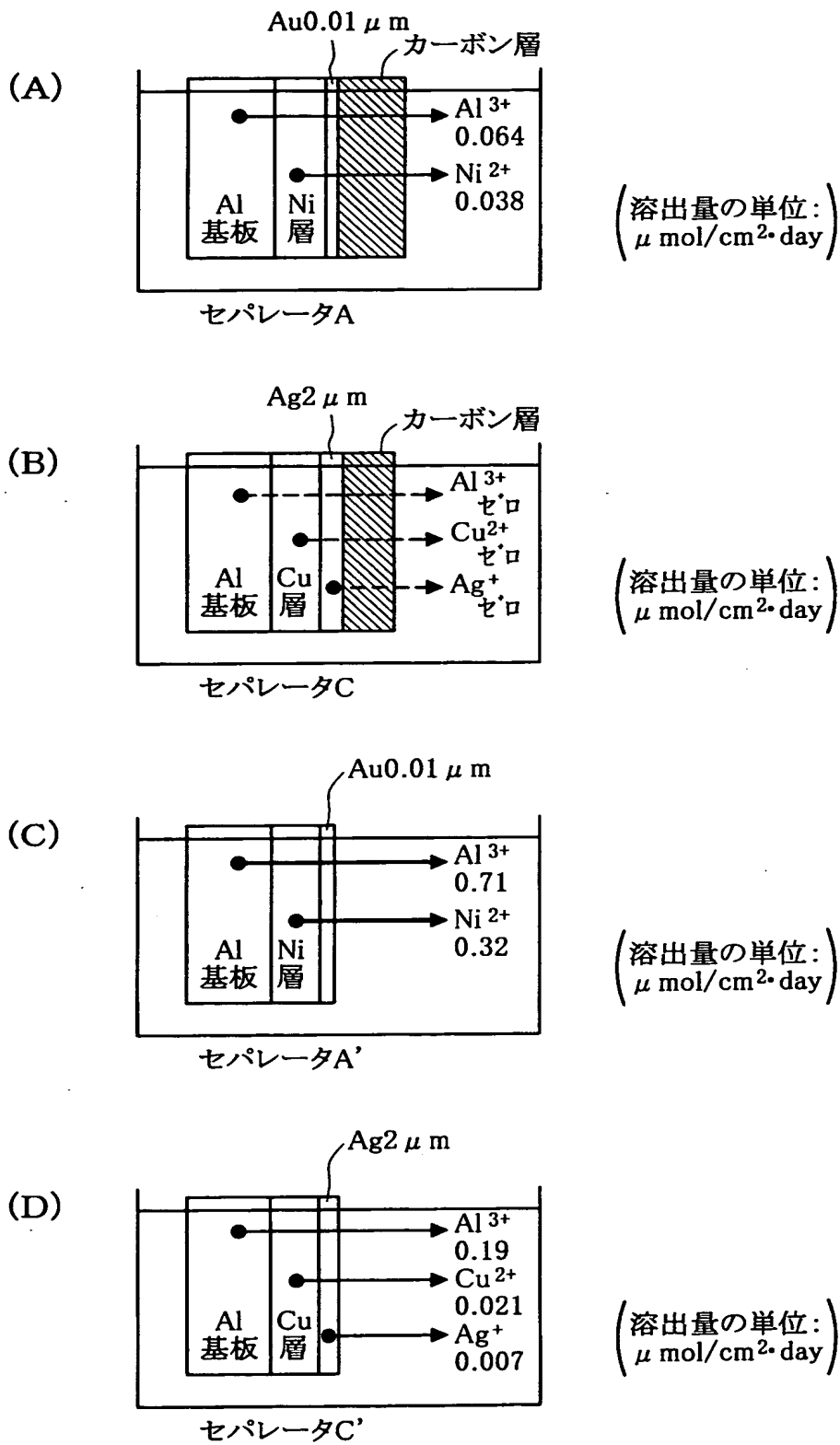
【図 1 1】



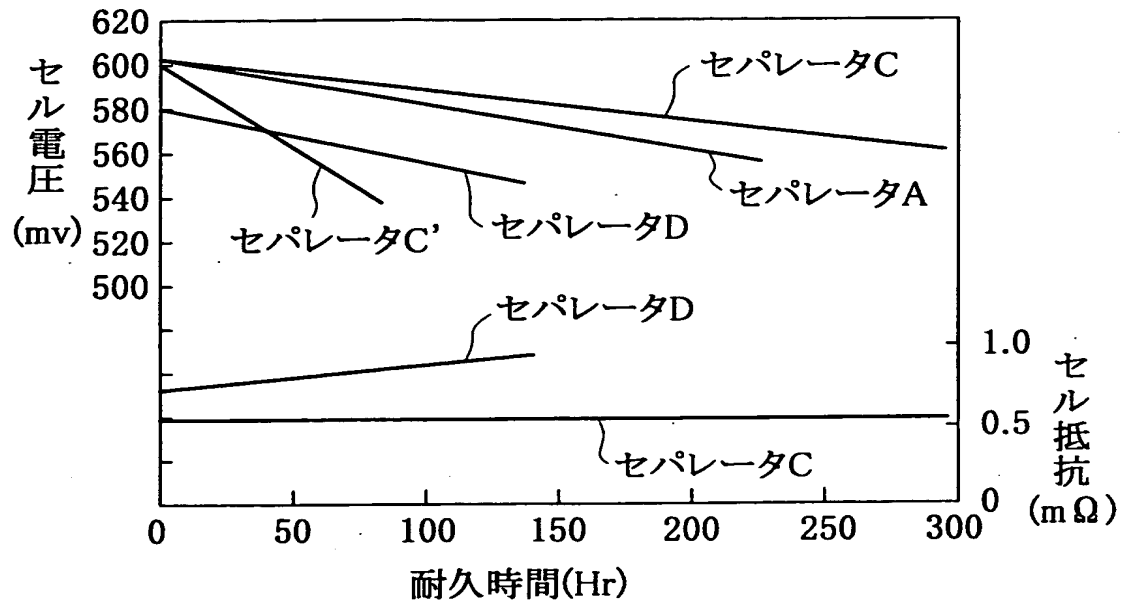
【図 1 2】



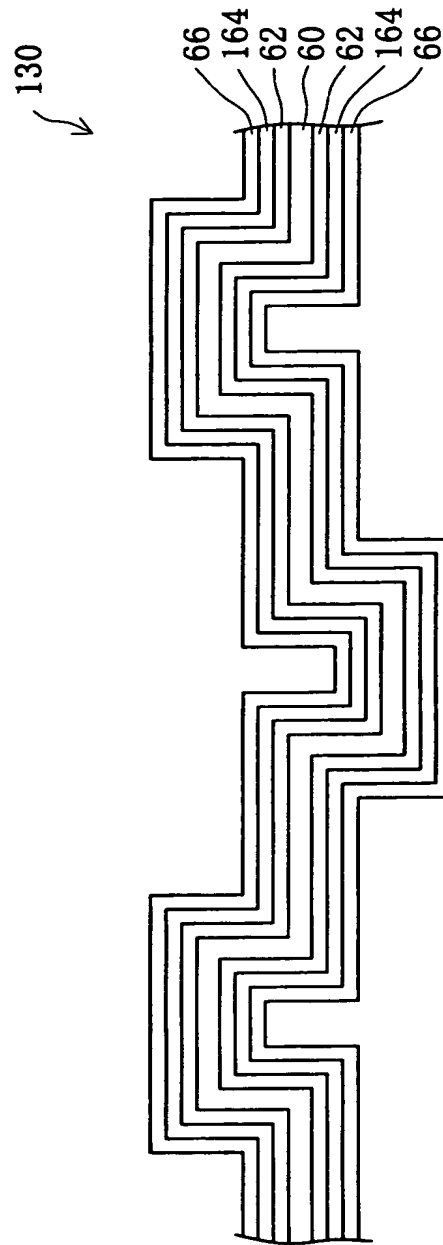
【図13】



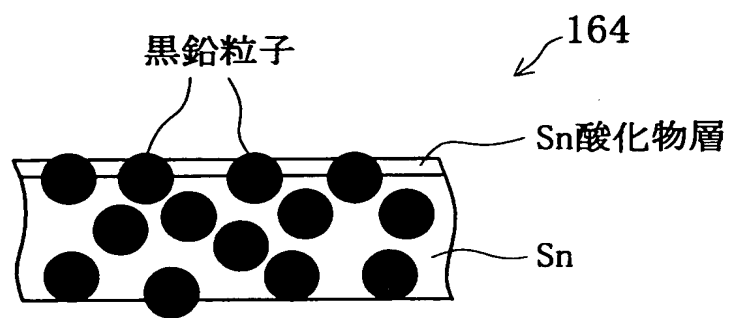
【図14】



【図 1 5】



【図 1 6】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 金属製ガスセパレータにおいて十分な耐食性を実現する。

【解決手段】 セパレータ 3 0 は、所定の凹凸形状を有する基板部 6 0 と、基板部 6 0 上に設けられた下地コート層 6 2 と、これらを被覆する第 1 コート層 6 4 と、さらにその上に設けられた第 2 コート層 6 6 とを備える。第 2 コート層 6 6 は炭素材料によって構成され、十分な導電性を有すると共に、下側の層を保護する。第 1 コート層 6 4 は貴金属によって形成されるため、第 2 コート層 6 6 に覆われることによって極めて高い耐食性を示す。下地コート層 6 2 および基板部 6 0 は、第 1 コート層 6 4 および第 2 コート層 6 6 に覆われるため腐食の進行を十分に防止することができ、セパレータ 3 0 全体は優れた耐食性を示す。

【選択図】 図 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [0 0 0 0 0 3 2 0 7]

1. 変更年月日	1 9 9 0 年 8 月 2 7 日
[変更理由]	新規登録
住 所	愛知県豊田市トヨタ町 1 番地
氏 名	トヨタ自動車株式会社